

**Thèse de Doctorat de
l'Université Pierre et Marie Curie - Paris VI**

Ecole doctorale « Sciences de l'environnement d'Ile de France »

Spécialité : Physique de l'Atmosphère

*Evolution passée et future
de la composition chimique stratosphérique
et ses interactions avec le climat*

Présentée par
Virginie POULAIN

Soutenue le 12 avril 2013
devant le jury composé de :

<i>Président :</i>	M. Sébastien PAYAN
<i>Rapporteurs :</i>	M ^{me} Martine De MAZIERE M ^{me} Nathalie BRUN-HURET
<i>Examineurs :</i>	M ^{me} Chantal CLAUD M. Martyn CHIPPERFIELD M. Daniel CARIOLLE
<i>Directeurs de thèse :</i>	M. Slimane BEKKI M ^{me} Marion MARCHAND

Résumé

Evolution passée et future de la composition chimique stratosphérique et ses interactions avec le climat

Ces dernières décennies, la stratosphère et sa composition chimique ont subi des changements importants qui commencent à influencer le climat. Dans la stratosphère, les changements les plus significatifs du point de vue du climat sont l'amincissement de la couche d'ozone et l'augmentation de la vapeur d'eau.

Suite à l'augmentation de la charge en composés atmosphériques halogénés, la couche d'ozone s'est amincie au cours de ces trente dernières années. Cette charge a cessé d'augmenter à la fin des années 90 à la suite de l'application du Protocole de Montréal et de ses amendements sur le contrôle des émissions des CFC. On s'attend donc à ce que l'ozone stratosphérique retrouve, à l'échelle globale, les niveaux des années 60 (pré-CFC) au cours de ce siècle. Cependant l'ozone ne retrouvera certainement pas sa distribution spatiale des années 60 car cette distribution dépend non seulement de la charge en espèces halogénées mais aussi de la concentration des gaz à effet de serre. En effet, les évolutions de la stratosphère et du climat sont couplées par l'intermédiaire de mécanismes d'origine chimique, dynamique et radiatif. En parallèle, la vapeur d'eau a augmenté fortement depuis la seconde moitié du 20^{ème} siècle. Sur cette tendance à long terme se superposent des fluctuations inter-annuelles très substantielles. Par exemple, les observations ont montré une assez forte diminution de la vapeur d'eau en 2001 qui reste encore mal expliquée.

Pour mieux comprendre les caractéristiques entre la composition chimique de la stratosphère et le climat, des modèles de chimie-climat ont été développés durant la dernière décennie. Les climatologies de ces modèles ont été évaluées par des comparaisons avec divers jeux d'observations dans le cadre de grands programmes internationaux tels que SPARC/CCMVal. Cette thèse est plutôt centrée sur l'évaluation de la variabilité dans ces modèles. La variabilité peut être décomposée en deux termes : une variabilité dite interne (difficile à caractériser) générée au sein même du système atmosphérique et la variabilité dite forcée qui est générée par des forçages externes au système, tels que l'activité solaire ou la charge en composés halogénés.

La première partie de cette thèse porte sur l'évaluation des modèles en termes de variabilité inter-annuelle de la composition chimique stratosphérique, notamment ozone et vapeur d'eau. Nous nous intéressons non seulement à la variabilité inter-annuelle de l'ozone stratosphérique, vue des stations d'observations du NDACC, mais aussi aux contributions des forçages externes à cette variabilité. Ensuite, nous portons notre attention sur la vapeur d'eau stratosphérique et, en particulier, sur les phénomènes de variations assez rapides (aussi appelées ruptures) de sa teneur qui peuvent générer un forçage climatique très significatif. La capacité des CCM à reproduire ces ruptures est évaluée par des comparaisons à des longues séries temporelles d'observations. Enfin, nous étudions le forçage climatique des variations d'ozone, en particulier l'évolution de son forçage radiatif jusqu'à la fin du siècle et si l'évolution de l'ozone à l'échelle globale peut être un indicateur de son forçage radiatif.

Mots clés : Chimie-Climat, Stratosphère, Variabilité, Ozone, Vapeur d'eau

Abstract

Past and Future Evolution of stratospheric chemistry and its interactions with climate

In recent decades, the stratosphere and its chemical composition has undergone significant changes that are beginning to influence the climate. In the stratosphere, the most significant from the point of view of climate change are the ozone layer depletion and the increasing water vapor.

Following the increasing of the atmospheric loading of halogen compounds, the ozone layer has depleted over the last thirty years. This loading has been increasing in the late 90s as a result of the implementation of the Montreal Protocol and its amendments on the control of CFCs emissions. It is therefore expected that the stratospheric ozone found, on the global scale, the levels of 60s (pre-CFC) during this century. However, ozone does not recover its spatial distribution 60s because this distribution depends not only on the loading of halogen compounds, but also the greenhouse gas concentrations. Indeed, changes in the stratosphere and climate are coupled via chemical, dynamics and radiative mechanisms. In parallel, the water vapor has increased significantly since the second half of the 20th century. On this long-term trend superimposed very substantial inter-annual fluctuations. For example, observations showed a fairly sharp decline in water vapor in 2001, which remains poorly explained.

To better understand the characteristics between the stratospheric chemical composition and climate, chemistry-climate models have been developed during the last decade. Climatologies of these models were evaluated by comparisons with various sets of observations in the context of major international programs such as SPARC/CCMVal. This thesis is rather focused on the assessment of the variability in these models. Variability can be decomposed into two terms: the internal variability (hard to describe) generated from within the system and the forced variability which is generated by external forcing to the system, such as solar activity or loading of halogen compounds.

The first part of this thesis focuses on the assessment of the models in terms of inter-annual variability of stratospheric chemical composition, including ozone and water vapor. We are interested not only in the inter-annual variability of stratospheric ozone at NDACC observation stations, but also to external forcings contributions on this variability. Then, we focus on stratospheric water vapor, in particular, on the phenomena of fairly sharp variations (also called ruptures) of the content that can generate a very significant climate forcing. The ability of CCMs to reproduce these rupture is evaluated by comparisons with long time series of observations. Finally, we study the climate forcing of ozone variations, in particular evolution of its radiative forcing until the end of the century and if the evolution of ozone on a global scale may be an indicator of its radiative forcing.

Keywords: Chemistry-Climate, Stratosphere, Variability, Ozone, Water vapor

Remerciements

Cette thèse doit beaucoup aux nombreuses personnes qui m'ont encouragées et soutenues au long de ces trois années. Qu'elles trouvent donc l'expression de mes plus sincères remerciements.

En premier lieu, je tiens à remercier mon directeur de thèse, Monsieur Slimane Bekki, pour la confiance et l'autonomie qu'il m'a accordé. Il a su guider et enrichir ma réflexion scientifique. Sans jamais compter son temps, avec sa personnalité et son style, il a su rendre très agréables nos multiples conversations, échanges, et conseils. J'aimerais aussi remercier ma co-directrice de thèse, Madame Marion Marchand, pour sa très grande présence et sa très grande disponibilité du début à la fin de ce cycle d'études. J'ai été particulièrement sensible à leurs qualités scientifiques, pédagogiques et humaines. J'ai beaucoup appris à leurs côtés et je leurs adresse toute ma gratitude pour cela.

Mes remerciements vont également à Monsieur Sébastien Payan qui a accepté d'être le président de jury de cette thèse. Je le remercie pour son enthousiasme et sa clarté à présider la soutenance orale. Je suis particulièrement reconnaissante à Madame Martine de Mazière et Madame Chantal Claud d'avoir accepté de suivre mes travaux tout au long de ces trois ans en qualité de membres de mon comité de thèse, et de participer à l'évaluation finale comme membre du jury. Je remercie Madame Nathalie Huret-Brun d'avoir accepté d'être rapporteur de cette thèse ainsi que pour ses conseils de rédaction et son rapport détaillé. Je remercie également Messieurs Daniel Cariolle et Martyn Chipperfield de l'intérêt qu'ils ont manifesté à l'égard de mes travaux en acceptant d'en être les examinateurs.

Ma reconnaissance va également aux membres du personnel de mon laboratoire pour leur soutien logistique et matériel. Je remercie aussi les chercheurs, les ingénieurs, les post-doctorants, les doctorants pour leur conseils et leurs discussions de couloirs avec une mention spéciale pour celle qui a partagé mon bureau pendant trois ans, mademoiselle Marion Leduc-leballeur.

Merci au bureau 307 du couloir LMD pour votre bonne humeur, vos conseils scientifiques et esthétiques sans oublier toutes nos conversations parfois belliqueuses...Je remercie plus particulièrement Pauline et Ara, mes amis doctorants, avec qui j'ai partagé énormément de cafés.

Ces remerciements ne peuvent se poursuivre, sans une pensée pour ma « préceptrice » : Laurence qui a accepté le rôle de re-lectrice finale. Sa présence et ses encouragements sont pour moi les piliers fondateurs de cette aboutissement scolaire.

Je remercie mes amis « gaulois » pour leur festivité qui m'a permis d'aérer mon esprit dès que j'en avais besoin, et ma cavalière du samedi qui m'a accompagné pour stimuler un corps tonique, maintenu disponible pour que cet esprit reste le plus vif possible. Je remercie ma sœur et ma colocataire qui ont eu la gentillesse d'organiser et de réaliser un sympathique pot de thèse.

Je remercie ma famille qui m'a permis d'avoir un environnement serein pour réaliser cette thèse dans les meilleurs conditions.

Enfin, je remercie Yohann pour son soutien et ses encouragements quotidiens.

Table des matières

Introduction	13
1 Contexte scientifique	17
1.1 Dynamique de la stratosphère et chimie de l’ozone stratosphérique	18
1.1.1 Structure verticale de l’atmosphère	18
1.1.2 Dynamique de la stratosphère	19
1.1.2.1 Ecoulements zonaux moyens	20
1.1.2.2 Ondes dans la moyenne atmosphère	20
1.1.2.3 Transport zonal et méridien dans la stratosphère	21
1.1.3 Chimie de l’ozone stratosphérique	22
1.1.3.1 Chimie en phase gazeuse : Équilibre naturel de l’ozone stratosphérique	22
1.1.3.2 Chimie hétérogène : Trou d’ozone	24
1.2 Variabilité inter-annuelle de l’ozone stratosphérique et forçage radiatif	26
1.2.1 Variabilité inter-annuelle forcée de l’ozone stratosphérique	26
1.2.1.1 Cycle solaire	26
1.2.1.2 Oscillation quasi-biennale (QBO)	28
1.2.1.3 Oscillation sud - El Niño (ENSO)	29
1.2.1.4 Aérosols volcaniques	29
1.2.1.5 Forçages anthropiques	30
1.2.2 Forçage radiatif	31
1.2.2.1 Définition	31
1.2.2.2 Impact de l’ozone	32
1.2.2.3 Impact de la vapeur d’eau	32
1.3 Problématiques et objectifs spécifiques de la thèse	33
1.3.1 Problématiques	33
1.3.2 Objectifs spécifiques	35
2 Outils	37
2.1 Modèles de Chimie-Climat (CCM)	38
2.1.1 Définition d’un CCM	38
2.1.2 Activité CCMVal	39
2.1.2.1 Simulations	39
2.1.2.2 Forçages externes	41
2.1.2.3 Description des principales paramétrisations des CCM	46
2.1.2.4 Evaluation climatologique des CCM	47
2.2 Jeux d’observations	58

2.2.1	Observations par télédétection du sol	58
2.2.2	Observations in situ	60
2.2.3	Observations satellitales	61
3	Méthodes d'analyses	63
3.1	Désaisonnalisation	64
3.2	Régression linéaire multiple (MLR)	66
3.2.1	Cadre mathématique	67
3.2.2	Validation des hypothèses du modèle de MLR	68
3.2.2.1	Hypothèse 1	68
3.2.2.2	Hypothèse 2	70
3.2.2.3	Hypothèse 3	70
3.2.2.4	Hypothèse 4	70
3.2.2.5	Hypothèse 5	72
3.2.3	Transformation de Cochrane-Orcutt	73
3.2.4	Bootstrap	74
3.2.5	Coefficient de détermination	75
3.2.6	Test de significativité du modèle de MLR	76
3.2.7	Test de significativité des coefficients de régression	76
3.3	Analyse spectrale	77
3.3.1	Périodogramme de Lomb et Scargle	77
3.3.2	Tests de sensibilité	77
3.3.2.1	Effet du pas de temps irrégulier	77
3.3.2.2	Effet de la longueur de la série	78
3.3.2.3	Effet du cycle saisonnier	79
3.3.2.4	Effet de la tendance	79
3.3.2.5	Effet du bruit	81
3.4	Détection de ruptures	81
4	Evaluation de la composition chimique stratosphérique des CCM par les long séries de mesures du NDACC	85
4.1	Introduction	88
4.2	Observations and model simulations	91
4.2.1	Observations	91
4.2.2	Model Simulations	93
4.3	Method	94
4.4	Results	98
4.4.1	Annual Cycle in Stratospheric Chemical Composition	98
4.4.1.1	Seasonal Cycle in Ozone	98
4.4.1.2	Seasonal Cycle in Long-Lived Species CH ₄ and N ₂ O	99
4.4.1.3	Seasonal Cycle in Nitrogen Oxide Species NO ₂ and HNO ₃	99
4.4.1.4	Seasonal Cycle in Chlorine Reservoirs Species HCl, ClONO ₂ and their sum	102
4.4.2	Total and Interannual Variability of the Stratospheric Chemical Composition	106
4.4.2.1	Ozone Variability	106
4.4.2.2	CH ₄ and N ₂ O Variability	107
4.4.2.3	NO ₂ and HNO ₃ Variability	108
4.4.2.4	HCl, ClONO ₂ and their sum Variability	109
4.4.3	Inter-annual Variability explained by external forcings	110
4.4.3.1	Ozone Inter-Annual Variability	112
4.4.3.2	CH ₄ and N ₂ O Inter-Annual Variability	113
4.4.3.3	NO ₂ and HNO ₃ Inter-Annual Variability	113

4.4.3.4	HCl, ClONO ₂ and their sum Inter-Annual Variability	115
4.4.4	Absolute contributions of external forcings to interannual variability	116
4.4.4.1	Total Ozone sensitivity to external forcings	118
4.4.4.2	Total CH ₄ , N ₂ O, NO ₂ and HCl Sensitivity to main external forcings	123
4.5	Summary and conclusions	125
5	Variabilité de la vapeur d'eau stratosphérique	129
5.1	Contexte scientifique	131
5.1.1	Rôle dans la chimie stratosphérique et le climat	131
5.1.2	Tendances de la vapeur d'eau	132
5.1.3	Rupture en 2001	134
5.1.4	Etat de la modélisation et plan	135
5.2	Variabilité de la vapeur d'eau dans la stratosphère à partir de la longue série temporelle (1981-2004) à Boulder	136
5.2.1	Tendance	137
5.2.2	Cycle saisonnier	137
5.2.3	Périodogrammes	139
5.2.4	Variabilité expliquée par les forçages externes	143
5.2.5	Tests de sensibilité sur la longueur de la série et sur l'approche zonale	145
5.2.5.1	Tendance	145
5.2.5.2	Cycle saisonnier	147
5.2.5.3	Périodogrammes	148
5.2.5.4	Variabilité expliquée par les forçages externes	152
5.3	Phénomènes de ruptures	155
5.3.1	Ajustement de la méthode de détection des ruptures	155
5.3.2	Analyse des ruptures détectées dans les forçages externes	156
5.3.3	Analyse des ruptures des longues séries temporelles de vapeur d'eau à Boulder	157
5.3.4	Tests de sensibilité	160
5.3.5	Phénomène de ruptures dans les régions tropicales	160
5.3.5.1	Vapeur d'eau	161
5.3.5.2	Ozone	164
5.3.5.3	Température	166
5.3.5.4	Méthane	168
5.3.6	Variabilité forcée vs variabilité interne	170
5.4	Conclusions et perspectives	172
6	Impact climatique de la reconstitution de l'ozone stratosphérique	177
6.1	Introduction	179
6.2	Models runs	179
6.3	Results	180
6.3.1	ozone changes	180
6.3.2	radiatif forcing	184
6.4	conclusions	187
	Conclusions et perspectives	189
	Acronymes	195
	Glossaire des espèces chimiques	197
	Références	199

Introduction

Ces dernières décennies, la stratosphère et sa composition chimique ont subi des changements importants qui commencent à influencer le climat [*IPCC et al.*, 2007; *WMO*, 2011; *CCMVal*, 2010]. Ces changements, notamment l'amincissement de la couche d'ozone et l'augmentation de la vapeur d'eau, sont non seulement des thématiques importantes de recherche mais représentent également des inquiétudes sociétales.

Du fait de ses propriétés chimiques et radiatives, l'ozone constitue un élément clé dans le système climatique terrestre. La couche d'ozone se situe dans la stratosphère et représente environ 90% de la quantité totale d'ozone contenue dans l'atmosphère terrestre. Bien qu'en faible concentration relative, de l'ordre de quelques molécules d'ozone par millions de molécules d'air, l'ozone stratosphérique est indispensable au maintien de la vie sur Terre. Cette molécule est le principal absorbant atmosphérique du rayonnement ultraviolet, destructeur des cellules vivantes. Suite à l'augmentation de la concentration des composés chlorés et bromés dans la stratosphère, la couche d'ozone s'est amincie au cours de ces trente dernières années. Cet amincissement à long terme semble s'être stabilisé depuis la fin des années 90 à la suite de l'application du protocole de Montréal et de ses amendements qui ont conduit à diminuer considérablement, si ce n'est presque arrêter, les émissions de chlorofluorocarbures (CFC) et d'autres composés halogénés à longue durée de vie d'origine anthropique. La charge atmosphérique des composés halogénés a commencé à diminuer à la fin du siècle dernier et va retrouver des valeurs typiques des années 60 (période pré-CFC) à la fin du 21^{ème} siècle [*IPCC et al.*, 2007; *WMO*, 2011]. Suite à cette diminution, l'ozone stratosphérique devrait retrouver, à l'échelle globale, les niveaux des années 60 au cours de ce siècle [*Eyring et al.*, 2010]. Cependant, la reconstitution de l'ozone sera très variable localement ce qui signifie que la distribution d'ozone à la fin du siècle sera certainement différente de celle des années 60 car l'évolution de la concentration locale d'ozone dépend non seulement de l'évolution de la charge en halogène mais aussi de celle de la concentration des gaz à effet de serre (le dioxyde de carbone, le méthane et le protoxyde d'azote) [*Eyring et al.*, 2010; *CCMVal*, 2010]. En effet, les changements de température et de la circulation générale impactent la distribution et la tendance de l'ozone stratosphérique [*IPCC et al.*, 2007; *WMO*, 2011].

L'ozone n'est pas la seule espèce chimique à avoir subi des changements importants dans la stratosphère. La vapeur d'eau a aussi augmenté assez fortement dans la stratosphère depuis la seconde moitié

du 20^{ème} siècle [Oltmans *et al.*, 2000; Scherer *et al.*, 2008]. Cependant, sur cette tendance à long terme se superpose une variabilité inter-annuelle très significative. Par exemple, les observations ont montré une forte diminution de la vapeur en 2001 qui reste encore mal expliquée [Solomon *et al.*, 2010; WMO, 2011]. Comme la vapeur d'eau joue un rôle important dans le bilan radiatif de la stratosphère, son augmentation contribue à refroidir la stratosphère et à réchauffer la troposphère [IPCC *et al.*, 2007]. Ces perturbations du bilan énergétique terrestre d'origine stratosphérique sont loin d'être négligeables et doivent être prises en compte dans les problématiques liées aux changements climatiques. La vapeur d'eau joue également un rôle important dans la chimie de la stratosphère, notamment dans la chimie de l'ozone car elle est un précurseur des radicaux hydrogénés [Dvortsov and Solomon, 2001]. Pour cette raison, les changements de concentration de la vapeur d'eau perturbent les cycles catalytiques de destruction de l'ozone. De plus la vapeur d'eau participe à la formation des nuages stratosphériques polaires (PSC), autres catalyseurs de la destruction d'ozone. Une augmentation de la vapeur d'eau pourrait conduire à terme à un accroissement de 30% de la perte d'ozone en Arctique [Tabazadeh *et al.*, 2000].

Avant de prédire l'évolution future de la composition chimique stratosphérique, il est important de comprendre son évolution et sa variabilité passée. La stratosphère varie sur un large spectre d'échelles temporelles, allant de la journée à des décennies. Cette évolution est contrôlée par les processus chimiques, dynamiques et radiatifs et leurs rétroactions qui sont encore parfois mal compris. Il est parfois difficile d'identifier les causes et les effets dans les chaînes de réponses à des perturbations. La variabilité de la stratosphère peut être décomposée en deux termes : une variabilité dite interne générée au sein même du système atmosphérique et la variabilité dite forcée qui est générée par des forçages externes au système atmosphérique. Les variabilités périodiques telles que la variabilité saisonnière, peuvent être plus faciles à identifier et à comprendre, alors que les variabilités dites forcées sont moins évidentes à appréhender. Une partie de cette variabilité forcée a souvent pour origine des forçages externes bien identifiés tels que l'oscillation quasi-biennale (QBO, bien que de nature plus ou moins interne, est considérée comme un forçage externe), l'oscillation australe-l'El Niño(ENSO), les aérosols volcaniques, l'activité solaire et les émissions anthropiques.

Pour observer et comprendre l'évolution de la composition chimique de l'atmosphère, de nombreux instruments ont été développés au cours du 20^{ème} siècle. Des stations géophysiques ont été mises en place et réparties sur toute la surface du globe terrestre pour obtenir une couverture spatiale globale. Depuis la deuxième moitié du 20^{ème} siècle, pour améliorer les études sur la composition chimique stratosphérique, des missions satellitaires ont été également mises en place : l'instrument satellitaire TOMS (*Total Ozone Mapping Spectrometer*) a permis d'observer l'extension spatiale du trou d'ozone et le satellite UARS (*Upper Atmosphere Research Satellite*) a permis de confirmer le rôle des composés chlorés dans la destruction de l'ozone. Ces mesures variées ont été fédérées et standardisées au sein de réseaux internationaux tel que le NDACC (*Network for Detection of Atmospheric Composition Change*).

En parallèle à ces avancées instrumentales, la communauté scientifique a mis en oeuvre des méthodes numériques pour décrire le système atmosphérique. Ces simulateurs de l'atmosphère sont

capables de décrire les grandes caractéristiques de l'atmosphère terrestre (paramètres dynamiques, composition chimique, ...) et couvrent un large gamme d'applications (météorologie, pollution, ozone stratosphérique, climat, ...). Depuis une dizaine d'année, la communauté scientifique étudiant le climat et celle étudiant l'atmosphère moyenne en particulier la couche d'ozone collaborent de plus en plus étroitement. L'ozone stratosphérique et le climat peuvent s'influencer mutuellement par le biais de mécanismes dynamiques, chimiques et radiatifs et de rétroactions complexes. Pour cette raison, la plupart des grandes institutions de recherche sur l'atmosphère, l'ozone et le climat se sont lancées dans le développement de modèles de circulation générale couplés à des modules de chimie. Ce type de modèles couplés sont appelés des modèles de chimie-climat (CCM) [Austin and Butchart, 2003; Eyring et al., 2006]. Au lieu d'utiliser des climatologies des gaz radiatifs dans les calculs du transfert radiatif, le CCM utilise les champs de concentration calculés par le modèle lui-même, ce qui permet un véritable couplage entre la chimie, le rayonnement et la dynamique. Il est ainsi possible de calculer la réponse finale de l'atmosphère à une perturbation de la composition chimique ou à un forçage quelconque en prenant en compte le plus possible de rétroactions présentes dans l'atmosphère.

Suite aux progrès importants de modélisation du climat et, en particulier, des interactions chimie-climat, l'organisme SPARC (*Stratospheric Processes And their role in Climate*) a initié en 2003 la mise en place d'un programme d'inter-comparaison et de validation des modèles de chimie-climat, appelé CCMVal (*Chemistry-Climate Model Validation Activity*). Cette activité a pour but d'améliorer notre compréhension et simulation de la stratosphère dans les CCM et des couplages chimie-dynamiques à travers, entre autres, une évaluation des différentes représentations des processus dynamiques, chimiques et radiatifs et de comparaisons climatologiques avec divers jeux d'observations. Les résultats des simulations CCMVal ont aussi servi de support à l'élaboration des rapports internationaux WMO/UNEP (World Meteorology Organisation/United Nations Environment Programme) sur l'état de la couche d'ozone WMO [2007, 2011]. Ces simulations chimie-climat ont été aussi l'objet de nombreuses études sur l'évolution passée et future de l'ozone et des phénomènes associés [Eyring et al., 2006, 2007; Son et al., 2008; Struthers et al., 2009; Scinocca et al., 2010; Karpechko et al., 2010; Austin et al., 2010a,b; Eyring et al., 2010; Forster et al., 2011] ainsi que sur la variabilité stratosphérique [Oman et al., 2010a,b; CCMVal, 2010; Butchart et al., 2011].

Les aspects d'évaluation de climatologies des modèles et de tendances à long terme ont été très largement couverts dans le programme du CCMVal [CCMVal, 2010; WMO, 2011]. Cette thèse se focalise sur un aspect très peu considéré dans les travaux du CCMVal, essentiellement les aspects de la variabilité inter-annuelle de la stratosphère. L'objectif est d'identifier les facteurs importants qui pilotent cette variabilité inter-annuelle. La première partie porte sur l'évaluation des modèles de chimie-climat en termes de variabilité inter-annuelle de la composition chimique stratosphérique, notamment de l'ozone et de la vapeur d'eau. Nous commençons par évaluer la capacité des modèles à reproduire non seulement la variabilité inter-annuelle de l'ozone stratosphérique, vue de stations de mesures du NDACC, mais aussi les contributions des forçages externes sur cette variabilité. Ensuite, nous portons notre attention sur la variabilité de la vapeur d'eau stratosphérique et, en particulier, sur les phénomènes de variations assez rapides (aussi appelées ruptures) de sa teneur qui peuvent

générer un forçage climatique très significatif. La capacité des modèles de chimie-climat à reproduire ces ruptures sera évaluée par des comparaisons à des longues séries temporelles d'observations ballons et satellitaires. Enfin, nous étudierons les projections futures de l'ozone stratosphérique et l'évolution future de son forçage radiatif.

Cette thèse se décompose en six chapitres. Le premier chapitre présente quelques notions importantes sur la dynamique, la chimie et le forçage radiatif de la stratosphère ainsi que sur la variabilité inter-annuelle stratosphérique. Dans un deuxième chapitre, nous décrivons les modèles de chimie-climat et les observations analysés dans cette thèse. Les méthodes d'analyse développées sont décrites dans le chapitre 3. Le chapitre 4 présente une étude approfondie de la variabilité des colonnes stratosphériques et particulièrement la variabilité inter-annuelle induite par les forçages externes. Dans le chapitre 5, l'évolution et la variabilité de la vapeur d'eau est examinée. L'étude est centrée sur les phénomènes de ruptures, comme la forte diminution de vapeur d'eau stratosphérique observée en 2001. Le chapitre 6 est consacré à l'évolution future de l'ozone et son forçage radiatif futur. Dans le dernier chapitre, nous rappelons les principales conclusions de chaque chapitre et nous présentons quelques perspectives.

Chapitre 1

Contexte scientifique

Sommaire

1.1	Dynamique de la stratosphère et chimie de l’ozone stratosphérique	18
1.1.1	Structure verticale de l’atmosphère	18
1.1.2	Dynamique de la stratosphère	19
1.1.2.1	Ecoulements zonaux moyens	20
1.1.2.2	Ondes dans la moyenne atmosphère	20
1.1.2.3	Transport zonal et méridien dans la stratosphère	21
1.1.3	Chimie de l’ozone stratosphérique	22
1.1.3.1	Chimie en phase gazeuse : Équilibre naturel de l’ozone stratosphérique	22
1.1.3.2	Chimie hétérogène : Trou d’ozone	24
1.2	Variabilité inter-annuelle de l’ozone stratosphérique et forçage radiatif . .	26
1.2.1	Variabilité inter-annuelle forcée de l’ozone stratosphérique	26
1.2.1.1	Cycle solaire	26
1.2.1.2	Oscillation quasi-biennale (QBO)	28
1.2.1.3	Oscillation sud - El Niño (ENSO)	29
1.2.1.4	Aérosols volcaniques	29
1.2.1.5	Forçages anthropiques	30
1.2.2	Forçage radiatif	31
1.2.2.1	Définition	31
1.2.2.2	Impact de l’ozone	32
1.2.2.3	Impact de la vapeur d’eau	32
1.3	Problématiques et objectifs spécifiques de la thèse	33
1.3.1	Problématiques	33
1.3.2	Objectifs spécifiques	35

Dans la première partie de ce chapitre, nous présentons quelques notions importantes sur la structure verticale de l'atmosphère (section 1.1.1), sur la dynamique de la stratosphère (section 1.1.2) et sur la chimie de l'ozone stratosphérique (section 1.1.3). Dans une seconde partie, nous décrivons la variabilité inter-annuelle forcée de l'ozone stratosphérique (section 1.2.1) ainsi que l'impact de l'ozone et la vapeur d'eau sur le bilan radiatif du système Terre-Atmosphère (section 1.2.2). Dans une dernière partie, nous présentons la problématique de la thèse (section 1.3.1) et nous en énonçons les objectifs spécifiques (section 1.3.2).

1.1 Dynamique de la stratosphère et chimie de l'ozone stratosphérique

1.1.1 Structure verticale de l'atmosphère

L'atmosphère est une fine couche gazeuse qui entoure notre planète, elle est composée à 78,09% d'azote, 20,95% d'oxygène, 0,93% d'argon et d'une variété de gaz en traces dont certains jouent un rôle important sur la chimie ou le bilan radiatif malgré leurs faibles concentrations. Il est possible de découper l'atmosphère en couches selon le signe du gradient de température intrinsèque à chaque couche. Le passage d'une strate à l'autre est alors matérialisé par une inversion du gradient de température. La Figure 1 présente le profil vertical de la température moyenne aux moyennes latitudes ainsi que les quatre premières couches de l'atmosphère terrestre.

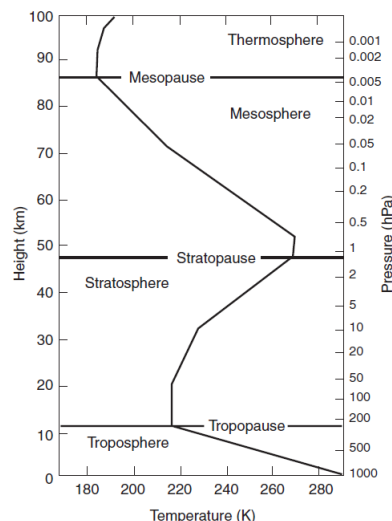


Fig. 1. – Structure verticale de l'atmosphère et profil vertical de la température moyenne aux moyennes latitudes [Holton, 2004].

La troposphère est la première couche de l'atmosphère terrestre. La limite inférieure de la troposphère est la surface terrestre et sa limite supérieure est la tropopause qui s'élève à 8 km aux

pôles et jusqu'à 18 km à l'équateur, tout en variant avec les saisons et les conditions météorologiques. La troposphère est définie par un gradient de température négatif, sa température décroît d'environ $6,5^{\circ}\text{C.km}^{-1}$ avec l'altitude. Le profil de température moyen résulte en grande partie d'un équilibre entre le forçage radiatif et la convection. La troposphère contient environ 90% de la masse totale de l'atmosphère et la majeure partie de la vapeur d'eau (99%). Cette espèce chimique est le vecteur principal des transports méridiens d'énergies dans la troposphère. Ainsi, comme le confirme l'étymologie du mot « tropos » qui signifie en grec « mouvement », la troposphère est le siège des phénomènes météorologiques intenses associés à des mouvements verticaux rapides.

La stratosphère est caractérisée par un gradient de température positif jusqu'à 50 km environ, où se situe la stratopause, limite supérieure de cette couche. Autour de 20-25 km se trouve la couche d'ozone, essentielle à la présence de la vie sur la terre car elle absorbe la majorité des rayonnements ultraviolets (UV) extrêmement nocifs pour les êtres vivants. Cette absorption provoque le dégagement d'énergie sous forme de chaleur qui est à l'origine du gradient thermique positif de la stratosphère. Bien que la dynamique associée aux déferlements des ondes atmosphériques peut perturber le bilan d'énergie localement, surtout dans l'hémisphère d'hiver, le bilan global d'énergie est dominé par les processus radiatifs dans la stratosphère. Le profil moyen de température est principalement déterminé par le chauffage dû à l'absorption de rayonnement UV par l'ozone et le refroidissement par l'émission infra-rouge par le dioxyde de carbone (CO_2), et dans une moindre mesure, par l'ozone et la vapeur d'eau. Contrairement à la troposphère, du fait de son gradient vertical de température positif, la stratosphère est très stable et stratifiée, ce qui veut dire que les mouvements verticaux sont très lents. La stratosphère est très riche en ozone et très sèche. La formation de nuages n'est généralement possible que dans la basse stratosphère polaire durant l'hiver.

La mésosphère est la couche située au dessus de la stratosphère. Dans cette strate, l'émission infrarouge du CO_2 est suffisante pour entraîner une diminution de la température avec l'altitude. Un minimum de température est atteint à la mésopause vers 80 km d'altitude. La thermosphère est la couche au-dessus de la mésosphère. Le rayonnement solaire UV ($\lambda < 175\text{ nm}$) est absorbé dans cette couche et entraîne l'augmentation de la température. Son épaisseur, jusqu'à la thermopause (limite supérieure de la thermosphère), est très variable, elle s'étend en moyenne jusqu'à 600 km.

1.1.2 Dynamique de la stratosphère

La dynamique de l'atmosphère est complexe car elle résulte de phénomènes très distincts, et souvent couplés. La circulation dans la stratosphère est très différente de celle de la troposphère car la stratosphère est stratifiée, donc les mouvements verticaux sont très lents alors que les mouvements horizontaux peuvent être très rapides sur les surfaces isentropes (*i.e.* surface où la température potentielle est constante).

1.1.2.1 Ecoulements zonaux moyens

Les vents dans la direction zonale (*i.e.* le long des cercles de latitude) sont les plus puissants comparés à la direction meridionale ou verticale. Ils tendent à homogénéiser la distribution des constituants dans la direction zonale en l'espace d'un mois typiquement. La circulation stratosphérique est marquée par la présence de courants de vents zonaux violents appelés courants jets. On y distingue clairement les jets subtropicaux dans la basse stratosphère vers 30° N et 30° S et le jet polaire dans la moyenne et haute stratosphère de l'hémisphère d'hiver. Les courants jets forment de réelles barrières au transport méridien et divisent la stratosphère en trois zones dans l'hémisphère d'hiver : la zone intertropicale, la zone de mélange et la zone polaire.

Dans la moyenne stratosphère, entre 30 et 80 km d'altitude, le courant jet polaire est un vent violent d'ouest dans l'hémisphère d'hiver. Lors de l'entrée dans la nuit polaire, les masses d'air situées au-dessus du pôle d'hiver se refroidissent fortement et une puissante subsidence apparaît. L'air stratosphérique se déplace alors de l'équateur vers le pôle et est dévié par la force de Coriolis pour former le vortex polaire vers 65° de latitude. L'intensité du vortex augmente avec l'altitude tout comme le gradient thermique. Dans l'hémisphère nord, l'alternance des continents et des océans inhibe la formation d'un vortex aussi stable que dans l'hémisphère sud. En Arctique, le vortex est moins intense et se déforme plus facilement qu'en Antarctique. A la fin du printemps, suite au réchauffement de la stratosphère polaire et à l'action des ondes atmosphériques, le vortex s'affaiblit et finit par se rompre.

1.1.2.2 Ondes dans la moyenne atmosphère

Les ondes atmosphériques jouent un rôle majeur dans le transport des gaz en traces dans la stratosphère. On distingue principalement deux types d'ondes : les ondes de gravité et les ondes de Rossby (ou ondes planétaires). Ces ondes sont la réponse de l'atmosphère à une perturbation de son état moyen à l'équilibre par une force de rappel.

Les ondes de gravité résultent d'un effet opposé entre la force d'inertie et la force de rappel de la gravité. Elles ont une longueur d'onde de l'ordre de 10 à 100 km et une période de quelques dizaines de minutes à quelques heures. Elles sont créées par tous les phénomènes susceptibles d'induire localement de fortes vitesses verticales dans l'atmosphère (orographie, convection profonde, ...). Les ondes de gravité se propagent essentiellement à travers les jets d'ouest, présents dans l'hémisphère d'hiver. Elles freinent l'écoulement moyen lorsqu'elles déferlent dans la mésosphère et contribuent à la fermeture du jet (*i.e.* le vent tend vers zéro) au niveau de la mésopause. La turbulence engendrée par le déferlement des ondes de gravité entraîne un mélange tri-dimensionnel des constituants atmosphériques.

Les ondes de Rossby sont dues à la force de rappel induite par la variation de la force de Coriolis avec la latitude. Ces ondes sont des systèmes de très grande échelle (plusieurs milliers de kilomètres sur l'horizontal et plusieurs kilomètres sur la verticale) et sont engendrées par les grands systèmes orographiques. Les ondes de Rossby déferlent dans la stratosphère aux moyennes latitudes et freinent le jet d'ouest de l'hémisphère d'hiver. Le déferlement des ondes de Rossby entraîne un mélange bi-dimensionnel des constituants stratosphériques le long des surfaces isentropes. Ces ondes sont de

plus forte amplitude dans l'hémisphère nord, où le forçage orographique est plus important que dans l'hémisphère sud. Ces perturbations sont également plus intenses en hiver lorsque la propagation des ondes planétaires est favorisée par les mouvements d'air vers l'est dans la stratosphère.

1.1.2.3 Transport zonal et méridien dans la stratosphère

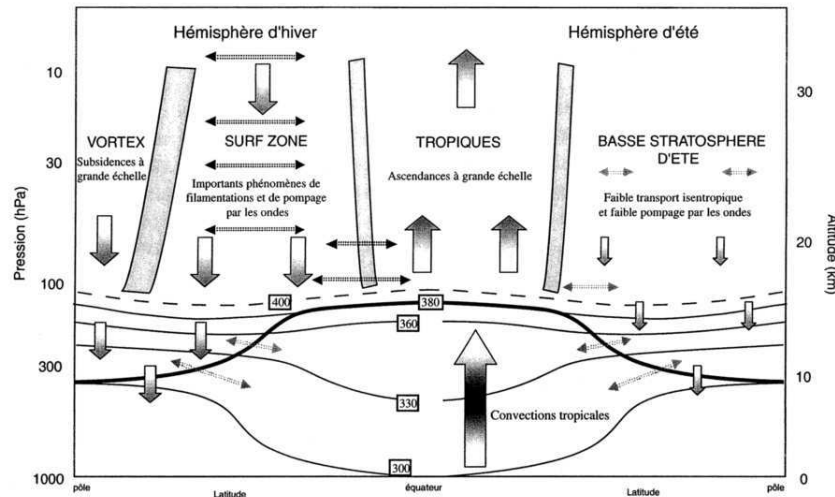


Fig. 2. — Schémas du transport zonal et méridien de la haute troposphère et de la basse stratosphère. Les lignes épaisses verticales représentent les barrières dynamiques. Les lignes fines horizontales représentent les surfaces isentropes. Le trait gras horizontal correspond à la tropopause. Les grosses flèches représentent le transport dû à la circulation de Brewer-Dobson. Les doubles flèches horizontales représentent le transport le long des surfaces isentropes. Au dessus de l'isentropie à 400 K, l'atmosphère est divisée en trois domaines dans l'hémisphère d'hiver : la zone intertropicale, la zone de mélange et la zone polaire. En dessous de l'isentropie à 400 K, l'atmosphère est divisée entre la troposphère et la très basse stratosphère (*lowermost stratosphere*) [Holton, 2004].

Les modifications de l'écoulement zonal moyen par les ondes s'accompagnent d'une circulation méridienne à grande échelle qui est présentée sur la Figure 2. Cette circulation est caractérisée par une advection ascendante aux tropiques, un transport isentropique dispersif et lent vers le pôle d'hiver et une subsidence de l'air aux moyennes latitudes et dans le vortex polaire. Cette circulation moyenne méridienne est souvent connue sous le terme de circulation de Brewer-Dobson. Ce transport zonal est lent et son origine est « la pompe extra-tropicale ». Cette pompe est créée par le déferlement des ondes planétaires dans la zone de mélange (*surf zone*) en hiver qui déplace les masses d'air vers le pôle. Cette zone est située entre deux barrières : la barrière subtropicale et la bordure du vortex polaire. Les barrières dynamiques inhibent fortement le passage des masses d'air d'une zone à l'autre. Le déplacement vers les pôles entraîne, par conservation de la masse, un mouvement ascendant d'air dans les régions tropicales. La circulation méridienne de Brewer-Dobson est donc une cellule intensifiée dans l'hémisphère d'hiver, grâce aux rôles des ondes planétaires plus importantes en hiver. Le trait gras horizontal correspond à la tropopause. Entre les surfaces isentropes à 380 et 400 K, l'atmosphère est divisée entre la troposphère et la basse stratosphère (*lowermost stratosphere*). Dans cette très basse

stratosphère extratropicale, les surfaces isentropes coupent la tropopause et des échanges de matière peuvent se produire le long des surfaces isentropes. Aux équinoxes, la circulation méridienne générale vers un pôle s'inverse vers l'autre pôle.

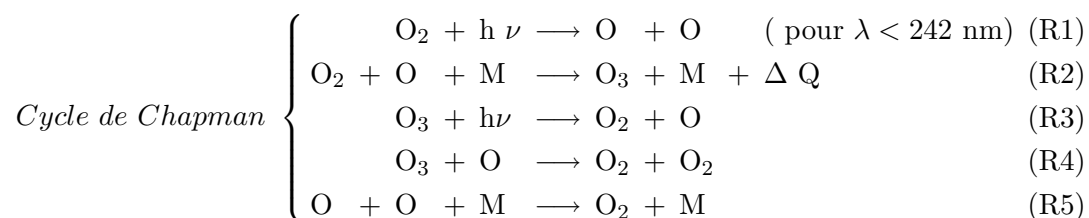
La circulation de Brewer-Dobson transporte les constituants chimiques de l'équateur vers les pôles. Cette circulation explique la répartition méridionale des composés atmosphériques qui au cours de leur transport peuvent subir des réactions chimiques ou photochimiques. La circulation de Brewer-Dobson est également responsable de la variation saisonnière de certains constituants.

1.1.3 Chimie de l'ozone stratosphérique

L'ozone est un constituant minoritaire de l'atmosphère, sa particularité réside dans sa distribution verticale différente de celle de la majorité des autres composés chimiques. En effet, le profil vertical de concentration d'ozone présente des valeurs faibles dans la troposphère. Ces valeurs augmentent à partir de la tropopause pour atteindre un maximum dans la basse stratosphère. Au-dessus de 30 km, la concentration d'ozone décroît avec l'altitude. La couche d'ozone se situe dans la stratosphère, elle rassemble environ 90% de la quantité totale d'ozone contenue dans l'atmosphère. L'altitude de la concentration maximale d'ozone varie en fonction de la latitude (plus basse aux pôles, 15-20 km, qu'à l'équateur, 25-30 km) et la saison (plus basse en hiver qu'en été). L'ozone stratosphérique absorbe le rayonnement solaire UV et assure ainsi un filtrage du rayonnement nocif pour les organismes vivants. Cette propriété lui donne le rôle d'un écran protecteur indispensable sans lequel la vie sur terre ne serait pas possible. De plus, l'absorption de l'UV par l'ozone conduit à un chauffage et au gradient positif de température de la stratosphère.

1.1.3.1 Chimie en phase gazeuse : Équilibre naturel de l'ozone stratosphérique

L'abondance de l'ozone dans l'atmosphère résulte d'un équilibre entre la production et la destruction de cette espèce. Le mécanisme photochimique de l'ozone stratosphérique dans une atmosphère où seule la famille d'oxygène (Ox) est considérée est défini par le cycle de Chapman. L'ozone est produit par la photodissociation de l'oxygène moléculaire (R1) suivie de la recombinaison de ce dernier avec un atome d'oxygène (R2). L'ozone est ensuite photodissocié (R3) ou réagit avec un atome d'oxygène (R4) pour former une ou deux molécules d'oxygène. La dernière réaction (R5) de ce cycle est la recombinaison à trois corps de l'oxygène atomique.



La réaction R2 entraîne un dégagement de chaleur (ΔQ) qui correspond à l'énergie de la liaison O-O₂ dans la molécule O₃. Ce processus explique le gradient positif de température observé dans la

stratosphère. Les réactions R3 et R4 ne rendent compte que de 20% de la perte naturelle de l’ozone. Pour parvenir à équilibrer la production et la destruction, il faut introduire des cycles catalytiques de destruction en phase gazeuse impliquant différentes familles d’espèces chimiques stratosphériques [Bates and Nicolet, 1950; Crutzen, 1970; Stolarski and Cicerone, 1974; Molina and Rowland, 1974]. Les catalyseurs de ces réactions sont des constituants minoritaires présents à des teneurs bien inférieures à celle de l’ozone. En tant que catalyseurs, ils ne sont pas consommés par les cycles de réactions. Ils peuvent ainsi participer à un grand nombre de cycles de destruction d’ozone, souvent entre 100 et 10 000. De cette manière, des espèces chimiques aux concentrations très inférieures à celle de l’ozone peuvent avoir un impact important sur sa destruction. Les réactions catalytiques de l’ozone font intervenir les composés suivants :

- les composés hydrogénés $\text{HO}_x = \text{H} + \text{OH} + \text{HO}_2$
- les composés azotés $\text{NO}_y = \text{N} + \text{NO} + \text{NO}_2 + \text{NO}_3$
- les composés bromés $\text{BrO}_x = \text{Br} + \text{BrO}$
- les composés chlorés $\text{ClO}_x = \text{Cl} + \text{ClO}$

Ces catalyseurs interviennent dans le cycle catalytique dont le schéma est présenté ci-dessous, où X représente H, OH, NO, N, Cl et Br.

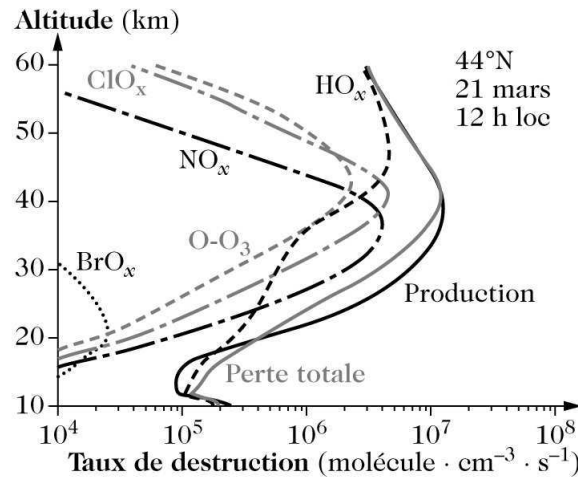
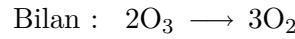
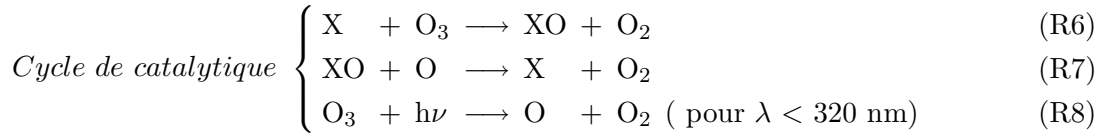


Fig. 3. – Taux de production et de destruction de l’ozone par les différentes familles chimiques (composés oxygénés, hydrogénés, azotés, chlorés et bromés) en fonction de l’altitude à 44° N au mois de mars [Delmas et al., 2005].

La Figure 3 présente les taux de production et de destruction de l’ozone stratosphérique par les différentes familles chimiques. La destruction de l’ozone par les composés NO_x est dominante dans la moyenne stratosphère (entre 30 et 40 km), tandis que les réactions impliquant les HO_x sont dominantes dans la basse (en dessous de 25 km) et la haute stratosphère (au dessus de 40 km). Les composés chlorés contribuent entre 20 et 30% à la destruction de l’ozone dans la haute stratosphère (vers 45 km d’altitude) et dans la basse stratosphère (entre 20 et 30 km). Les composés bromés jouent un rôle important dans la destruction de l’ozone dans la basse stratosphère, spécialement aux hautes latitudes dans l’hémisphère d’hiver. Au cours des dernières décennies suite à l’augmentation de composés halogénés, le taux de destruction par les composés chlorés et bromés de l’ozone a dramatiquement augmenté, principalement dans les régions polaires.

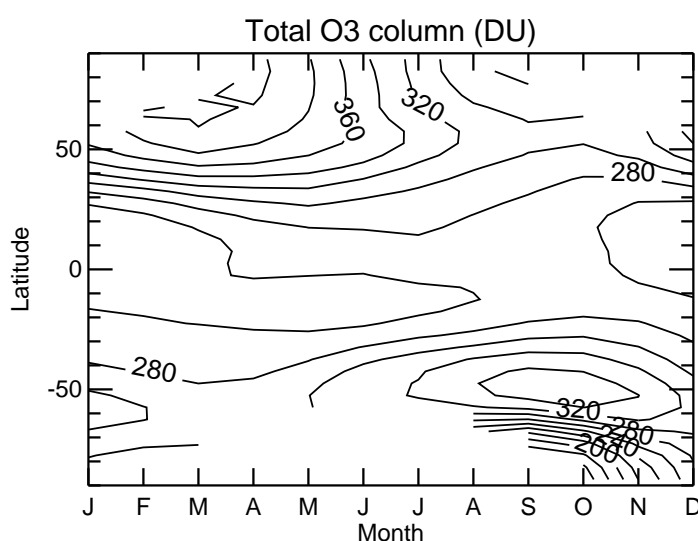


Fig. 4. – Variation saisonnière moyenne (1978-2005) de la colonne d’ozone (DU) issues des observations satellitaires TOMS (Total Ozone Mapping Spectrometer) en fonction de la latitude.

Il faut noter que la distribution spatio-temporelle de l’ozone dans la stratosphère n’est pas simplement déterminée par l’équilibre entre sa production et sa destruction. La Figure 4 montre la variation saisonnière de la colonne totale d’ozone en fonction de la latitude. La répartition latitudinale de la colonne d’ozone révèle des épaisseurs maximales aux hautes latitudes au début du printemps et non dans sa région de production, les tropiques, où la photodissociation de l’oxygène moléculaire est maximale du fait d’un maximum d’éclairement. Cela illustre l’importance des processus de transport notamment la circulation méridienne moyenne qui transporte l’ozone depuis les régions équatoriales vers les pôles d’hiver.

1.1.3.2 Chimie hétérogène : Trou d’ozone

La chimie en phase gazeuse permet d’expliquer le comportement saisonnier de l’ozone mais elle ne peut pas expliquer certains phénomènes comme la brusque diminution au printemps de l’ozone dans

les régions polaires.

La destruction de l'ozone stratosphérique par les composés chlorés, dont la source principale (les chlorofluorocarbones, CFC) est d'origine anthropique, conduit à sa destruction massive à la fin de l'hiver et durant l'été. Les CFC ont une longue durée de vie (de 12 ans à plus de 100 ans). Ces composées sont transportés jusque dans la stratosphère puis sont photodissociés lentement. La forte production et émissions des CFC en surface entraîne une augmentation considérable de la charge en chlore inorganique dans la stratosphère (*i.e.* molécules chlorées ne contenant pas d'atomes de carbone) [Molina and Rowland, 1974]. Une fois produit par la décomposition des CFC, le chlore est converti en espèces chimiques relativement stables (HCl et ClONO_2) appelées espèces réservoirs.

Durant la nuit polaire et suite à l'isolement des masses d'air stratosphérique par le vortex polaire, les températures de la basse stratosphère polaire sont très basses. Bien que la stratosphère soit très sèche, les températures sont suffisamment faibles pour permettre la formation de nuages stratosphériques polaires (*Polar Stratospheric Cloud*, PSC). Ils catalysent les réactions de chimie hétérogène qui convertissent rapidement les réservoirs chlorés (HCl et ClONO_2) en espèces chlorées instables, qui elles-mêmes vont être photodissociées au retour du soleil et former des radicaux chlorés (*i.e.* espèces très réactives chimiquement) (Cl , ClO , ...). Cette suite de réactions modifie la répartition des espèces chlorées entre radicaux et espèces réservoirs dans la basse stratosphère polaire. On parle « d'activation » du chlore. Le chlore actif (*i.e.* radicaux chlorés destructeurs d'ozone), et en particulier Cl , ainsi libéré réagit rapidement avec l'ozone par la réaction R6 et le ClO s'accumule dans le vortex polaire. Cette forte accumulation de chlore actif se maintient jusqu'à sa reconversion en réservoirs chlorés stables (ClONO_2) formés après réaction avec le NO_2 .

L'acide nitrique (HNO_3) formé à partir de l'oxydation de certains composés azotés (N_2O et ClONO_2) condense et reste piégé dans les PSC. Pour cette raison, les concentrations d'oxyde d'azote (NO_2 , NO et NO_2) sont extrêmement faibles dans le vortex polaire. La « désactivation » du chlore (*i.e.* reconversion du chlore actif en espèces réservoirs, typiquement ClONO_2) ne peut intervenir qu'en présence de NO_2 . Celui-ci est produit soit par la photodissociation de HNO_3 soit par la réaction de HNO_3 avec OH . Ces réactions chimiques ne sont actives qu'en présence de soleil donc au début du printemps. Cependant, l'élimination de HNO_3 peut aussi devenir irréversible. En effet, si les PSC atteignent une taille suffisante, ils sédimentent par effet de gravité et entraînent HNO_3 vers des altitudes plus basses. On parle alors de « dénitrification » puisque ce processus de perte correspond à la disparition du principal réservoir azoté, ce qui retarde la désactivation du chlore actif à l'intérieur du vortex polaire. A la fin du printemps, l'augmentation des températures entraîne la disparition des PSC et du vortex polaire. Les masses d'air provenant de l'intérieur du vortex, pauvre en ozone, se mélangent aux masses d'air des moyennes latitudes, riches en ozone. Suite à ce mélange, l'ozone augmente jusqu'à revenir à une valeur estivale. Les espèces chlorées actives sont reconvertis en espèces réservoirs.

Ces processus sont à l'origine de l'existence du trou d'ozone antarctique au printemps austral [Farman *et al.*, 1985]. En effet, au cours des mois de septembre et d'octobre, l'épaisseur de la couche d'ozone au dessus du continent Antarctique peut afficher des valeurs jusqu'à 70% plus faibles que dans les conditions pré-industrielles (*i.e.* concentrations en chlore beaucoup plus faible que de nos jours)

[WMO, 2003]. La perte chimique d’ozone est cantonnée à l’intérieur du vortex polaire. Une diminution en Arctique est également observée, mais elle est moins prononcée que celle de l’hémisphère sud. Les conditions météorologiques n’y permettent généralement pas la formation d’un vortex aussi stable que celui de l’Antarctique. En effet, les températures dans la basse stratosphère Arctique en hiver sont environ 5 à 15 K plus élevées qu’en Antarctique. Néanmoins, la variabilité d’un hiver à l’autre peut être très importante avec parfois des hivers très froids. Durant ces hivers très froids, les PSC peuvent se former sur des grandes échelles spatiales et la destruction d’ozone en Arctique devient alors très significative [Manney *et al.*, 1994, 2011].

1.2 Variabilité inter-annuelle de l’ozone stratosphérique et forçage radiatif

1.2.1 Variabilité inter-annuelle forcée de l’ozone stratosphérique

La stratosphère varie sur un large spectre d’échelles temporelles, allant de la journée à des décennies. Cette variabilité est contrôlée par les processus chimiques, dynamiques et radiatifs et leurs rétroactions qui sont encore mal compris. La variabilité de la stratosphère peut être décomposée en deux termes : une variabilité dite interne générée au sein même du système atmosphérique et la variabilité dite forcée qui est créée par des forçages externes au système atmosphérique. Une partie de cette variabilité forcée a souvent pour origine des forçages externes bien identifiés. Dans cette thèse, nous considérons seulement la variabilité stratosphérique inter-annuelle associée aux forçages externes suivants : le cycle solaire, l’oscillation quasi-biennale, l’oscillation australe-El ninõ, les aérosols volcaniques et les composés anthropiques. La Figure 5 montre les contributions naturelles ou anthropiques des forçages externes à la variabilité de la colonne d’ozone moyennée entre 60° N et 60° S.

1.2.1.1 Cycle solaire

L’activité du Soleil est étroitement liée à son champ magnétique. Elle a été évaluée historiquement par la distribution spatiale et temporelle de taches solaires visibles à sa surface. Outre la distribution de taches solaires, d’autres grandeurs sont à notre disposition pour évaluer les changements d’activité solaire, en particulier l’indice du flux à la longueur d’onde de 10,7 cm, noté F10.7.

Depuis les années 1970, les mesures satellitales ont permis de mettre en évidence une variation d’environ 0,1% (environ $1,1 \text{ W.m}^{-2}$) de l’irradiance totale (*i.e.* énergie intégrée sur tout son spectre) sur un cycle de 11 ans. Ces fluctuations d’énergie solaire apparaissent relativement faibles pour pouvoir affecter directement le climat de manière très significative. Cependant, les mesures satellitales montrent que l’amplitude de cette variation est plus importante dans la bande des ultraviolets. Elle peut atteindre 10% dans la bande des ultraviolets-C (UV-C centrés autour de 200 nm) où l’ozone est formé par la photolyse du dioxygène [Fahey and Hegglin, 2011]. L’ozone varie entre 1 à 2% entre un maximum et un minimum solaire. Les UV-B (centrés autour de 300 nm) sont essentiellement absorbés par l’ozone dans

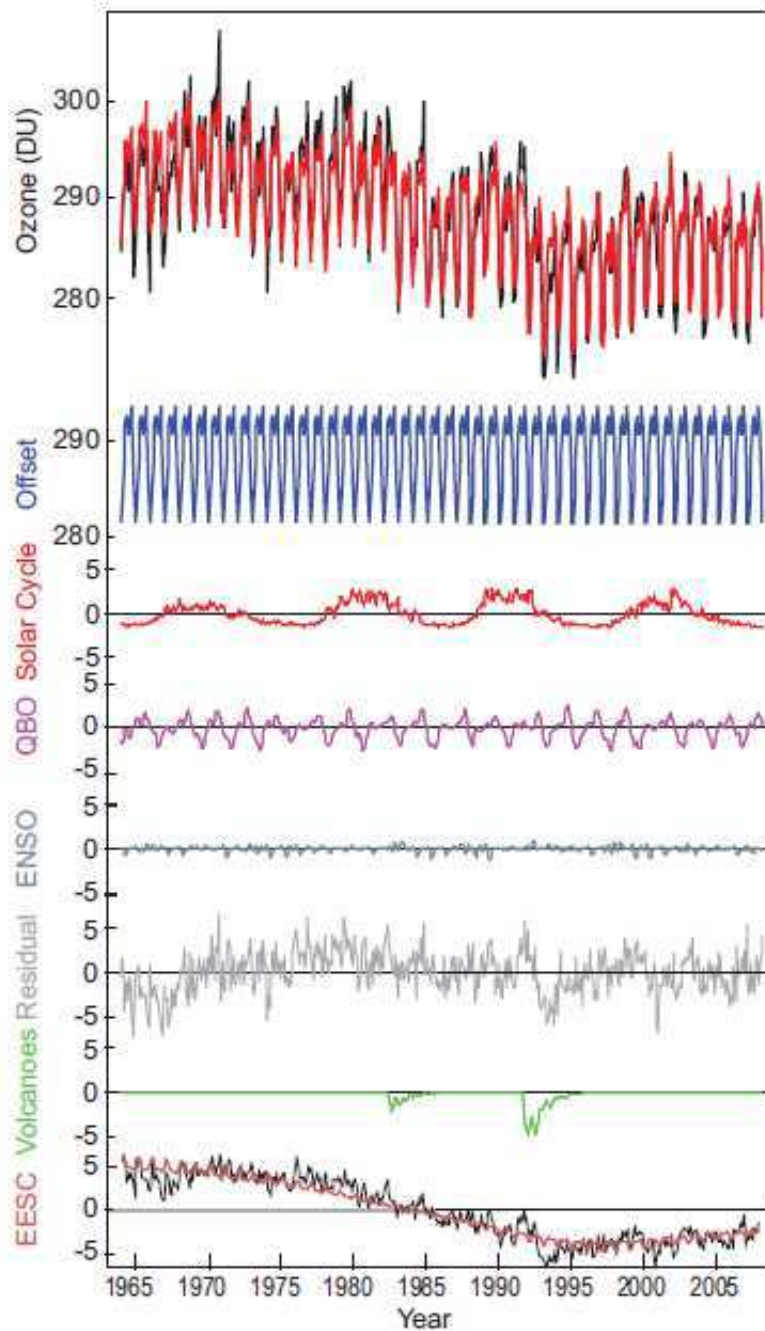


Fig. 5. – Evolution temporelle (1964-2010) de la variation de la colonne d’ozone entre 60° N- 60° S à partir d’un ensemble d’observations [Fioletov et al., 2002], des variations attribuées à des variables explicatives et estimées par un modèle de MLR et les résidus. De haut en bas : la colonne d’ozone en noire et l’ajustement par régression linéaire multiple en rouge avec pour variables explicatives le cycle saisonnier, le cycle solaire, la QBO, l’ENSO et les EESC ; la composante attribuée au cycle annuel en bleu, celle de la variabilité solaire, principalement le cycle solaire à 11 ans, en rouge ; la composante QBO en violet ; celle de l’ENSO en bleu clair ; les résidus en gris ; la composante des aérosols stratosphériques en vert et celle des EESC en rouge (chapitre 8 du rapport CCMVal [2010]).

la stratosphère et cette absorption est la principale source de chaleur dans la stratosphère, environ $12^{\circ}\text{C.jour}^{-1}$ à 50 km [Delmas *et al.*, 2005].

La variabilité solaire, notamment la modification du flux UV, perturbe directement la dynamique et la chimie de la stratosphère en modifiant le flux solaire disponible pour le chauffage de la stratosphère et le flux actinique pour la photochimie. Les perturbations de la distribution d’ozone se répercutent sur la structure thermique de la stratosphère et la circulation de Brewer-Dobson. La propagation de ces perturbations dans la troposphère, par l’intermédiaire de différents couplages dynamiques et chimiques, pourrait aussi affecter la troposphère et donc le climat [Fahey and Hegglin, 2011].

1.2.1.2 Oscillation quasi-biennale (QBO)

La variabilité inter-annuelle de la moyenne et la basse stratosphère équatoriale est dominée par une oscillation majeure influençant la distribution des gaz en traces : l’oscillation quasi-biennale (QBO) [Baldwin *et al.*, 2001]. La QBO est une oscillation des vents zonaux équatoriaux entre une phase d’est et une phase d’ouest dans la basse stratosphère sur un cycle de 24 à 30 mois (27 mois en moyenne). L’origine de cette oscillation est une interaction entre l’écoulement moyen et les ondes de gravité équatoriales qui transportent de la quantité de mouvement depuis la troposphère vers la stratosphère. L’amplitude maximale de cette oscillation est d’environ de 23 m.s^{-1} à l’équateur entre 10 et 30 hPa et est atténuée en dessous 40 hPa pour atteindre zéro à la tropopause. Le changement de direction des vents zonaux équatoriaux se produit autour de 10 hPa pour se propager vers le bas à une vitesse moyenne d’environ 1 km par mois.

Cette oscillation a un impact sur la distribution des gaz en traces pour deux raisons. Premièrement, elle modifie la structure thermique de la stratosphère tropicale et influence ainsi les vitesses des réactions chimiques déterminant l’abondance de certains constituants. Deuxièmement, la QBO interagit avec la circulation de Brewer-Dobson. En effet suivant sa phase, elle favorise ou inhibe le transport aux hautes latitudes [Trepte and Hitchman, 1992]. Lors de la phase d’est, la QBO offre des conditions favorables pour la propagation des ondes planétaires. La circulation de Brewer-Dobson est accélérée, il en résulte que le vortex est plus perturbé et plus chaud. Alors que pendant la phase d’ouest, la circulation générale est ralentie et le vortex polaire tend à être plus froid et plus stable [Randel *et al.*, 1999; Baldwin *et al.*, 2001]. Le contenu en vapeur d’eau de la stratosphère intertropicale reflète directement les différentes phases de la QBO [Mote *et al.*, 1996]. L’influence de la QBO est par exemple clairement visible sur les mesures tropicales d’ozone [Witte *et al.*, 2008]. La variation de la colonne d’ozone entre 10°N et 10°S est approximativement en phase avec les vents zonaux équatoriaux à 30 hPa. Entre 15° et 60° de latitude, les variations de la colonne d’ozone sont en opposition de phase avec le signal équatorial. Les amplitudes des variations de la colonne d’ozone sont de l’ordre de 2 à 4% de la quantité moyenne d’ozone [SPARC, 1998].

1.2.1.3 Oscillation sud - El Niño (ENSO)

L'ENSO (*El Niño-Southern Oscillation*) est un phénomène atmosphérique et océanographique reliant le phénomène El Niño et l'oscillation australe de la pression atmosphérique [Harrison and Larkin, 1998]. Le terme El Niño désigne les réchauffement anormaux vers le sud le long de la côte du Pérou et de l'Equateur, qui se produisent tous les 2 à 4 ans. Le réchauffement océanique le long de la côte s'étend jusqu'au Pacifique. La composante atmosphérique (l'oscillation australe) est la différence de pression le long de l'équateur créant une circulation des masses d'air vers l'ouest. Pendant un événement ENSO, on assiste à une augmentation de la pression au niveau de la mer entre le Pacifique oriental et occidental aux Tropiques (Oscillation du Sud), des vents d'est plus faibles dans le Pacifique Central, un décalage de la région de convection profonde dans le Pacifique central et des températures de surface de mer (*Sea Surface Temperature*, SST) plus chaudes dans le Pacifique central et oriental et le long de la côte de l'Amérique du Sud.

L'ENSO est un mode de variabilité du système couplé océan-atmosphère mais dont l'impact sur le climat se fait sentir sur des échelle spatiales et temporelles très larges. Son effet sur la température et la circulation de la stratosphère est direct dans la région de la basse stratosphère au dessus du Pacifique central et oriental (refroidissement radiatif), et indirect aux moyennes latitudes et dans la haute et moyenne stratosphère. L'ENSO affecte la colonne d'ozone [SPARC, 1998]. Cependant, les effets de l'ENSO sont principalement longitudinaux et l'influence en moyenne zonale sur la colonne d'ozone est inférieure à 1% de la valeur moyenne de la colonne d'ozone.

1.2.1.4 Aérosols volcaniques

Les grandes éruptions volcaniques conduisent à des augmentations de la charge stratosphérique d'aérosols [Robock, 2000]. Cette charge affecte le bilan radiatif terrestre par diffusion et absorption du rayonnement solaire, ce qui conduit à une diminution substantielle de la transmission solaire. Le forçage radiatif d'une couche d'aérosols volcaniques conduit à un refroidissement de la surface de la terre et à un réchauffement de la basse stratosphère [Fahey and Hegglin, 2011].

Les éruptions volcaniques ont également un effet important sur la chimie stratosphérique. L'augmentation de la charge en aérosols sulfatés amplifie l'efficacité des réactions hétérogènes. Cela conduit, par exemple, à un accroissement de la concentration de monoxyde de chlore (*i.e.* radical chloré intervenant dans la destruction d'ozone). Ces effets sont de durée limitée, de l'ordre de quelques années, car les aérosols ont un temps de résidence de quelques années dans la stratosphère. L'éruption du Mont Pinatubo en 1991 a induit la plus grande perte de la colonne d'ozone de ces 20 dernières années soit environ 3-4% de la teneur moyenne de l'ozone alors que sa variabilité naturelle est de plus ou moins 1% [WMO, 2003].

1.2.1.5 Forçages anthropiques

Halogènes

Les émissions des gaz chlorés et bromés à longue durée de vie ont augmenté rapidement depuis les années 50. Les gaz halogénés se photodissocient dans la stratosphère pour libérer du chlore et du brome actifs qui sont impliqués dans les cycles catalytiques de destruction de l’ozone. Le taux de destruction de l’ozone polaire est en partie proportionnel au carré de la concentration de chlore actif (*equivalent effective stratospheric chlorine EESC*). On estime que la teneur en chlore dans la stratosphère a triplé depuis 1960, ce qui implique une augmentation jusqu’à un facteur 9 du taux de destruction de l’ozone par le cycle catalytique du chlore dans les régions polaires. C’est cette dépendance quadratique qui explique l’apparition du phénomène du trou d’ozone dans les années 70 et 80.

Le protocole de Montréal (1987) a été signé par les pays producteurs de gaz halogénés afin de réduire et à terme éliminer les émissions des substances qui appauvrissent la couche d’ozone. Le protocole a été amendé à plusieurs reprises depuis 1987, en adoptant des mesures de plus en plus contraignantes, ou en étendant son champ d’action à un plus grand nombre de gaz. Les pays développés ont ainsi mis fin à la production des halons en 1994 et des CFC en 1996. Dans la plupart des applications, les CFC sont aujourd’hui remplacés par les hydrochlorofluorocarbones (HCFC) qui ont une faible durée de vie dans la basse atmosphère ou par les hydrofluorocarbones (HFC) qui ne contiennent plus d’atomes de chlore. Suite à la diminution des espèces halogénées, les modèles numériques prédisent que l’ozone retrouvera ses valeurs de 1980 vers le milieu du 21^{ème} siècle [IPCC *et al.*, 2007].

Gaz à effet de serre additionnels

La concentration des gaz à effet de serre additionnels (CO_2 , CH_4 et N_2O) a commencé à augmenter dans l’atmosphère depuis le début de l’ère industrielle. Les effets directs sur le bilan radiatif sont plus quantifiables que les effets indirects sur la dynamique et la chimie par l’intermédiaire d’une multitude de rétroactions. L’accroissement de la concentration des gaz à effet de serre additionnels entraîne une augmentation de la température de surface alors que la température de la stratosphère diminue. Les simulations numériques montrent qu’un doublement du CO_2 devrait entraîner un refroidissement global de la température de la stratosphère avec une diminution maximale de l’ordre de 10°C à 50 km d’altitude [IPCC *et al.*, 2007]. Un tel refroidissement engendre des répercussions sur la distribution des constituants stratosphériques car la chimie de la stratosphère est très dépendante de la température. Par exemple, l’ozone voit sa concentration augmenter à cause du ralentissement du cycle de destruction de Chapman (R4). Les modèles numériques prédisent une augmentation d’environ 10% de la colonne totale pour un doublement de CO_2 [IPCC *et al.*, 2007]. Cependant si la température stratosphérique diminue dans les régions polaires, les PSC vont plus facilement se former et donc augmenter la destruction de l’ozone polaire à court terme. Prédire l’impact des gaz à effet de serre additionnels sur l’évolution de la température est complexe et important pour l’évolution de l’ozone. Parallèlement, toute évolution de la concentration d’ozone s’accompagne d’une variation de la température et de la circulation atmosphérique, cette dernière étant intrinsèquement liée au gradient de

température. L'évolution de l'ozone est donc fortement liée à celles des gaz à effet de serre et aux changements climatiques [IPCC et al., 2007; WMO, 2011].

1.2.2 Forçage radiatif

Les gaz à effet de serre sont largement mis en cause dans cette problématique de changement climatique [IPCC et al., 2007; WMO, 2011]. Cependant, certains gaz radiatifs, bien qu'ils soient présents en très faible concentration dans la stratosphère, peuvent perturber le bilan énergétique de notre planète à l'échelle globale. Parmi ces gaz, l'ozone et la vapeur d'eau stratosphérique semblent jouer un rôle clé.

1.2.2.1 Définition

Le terme de forçage radiatif désigne et quantifie une perturbation affectant le bilan d'énergie radiative du système Terre-Atmosphère. Une perturbation du système peut être associée à des variations séculaires de la concentration atmosphérique d'espèces actives sur le plan radiatif, c'est à dire interagissant avec le rayonnement solaire et/ou infra-rouge terrestre (CO_2 , CH_4 , H_2O , O_3 ...), à des modifications du flux d'énergie solaire au sommet de l'atmosphère ou à tout autre facteur pouvant affecter le bilan radiatif de la planète (par exemple les poussières volcaniques). Cette perturbation du bilan radiatif peut conduire le système climatique vers un nouvel état d'équilibre. Il est positif s'il correspond à un réchauffement du système climatique ou négatif s'il correspond à un refroidissement du système climatique.

Par convention, le forçage radiatif exercé sur le système climatique par un agent extérieur est exprimé par la perturbation du flux net calculé au niveau de la tropopause. De plus ce forçage est exprimé après avoir permis à la stratosphère de revenir à son état d'équilibre radiatif. Les principaux gaz intervenant dans l'équilibre énergétique de la stratosphère sont l'ozone, qui absorbe le rayonnement solaire (échauffement), le CO_2 et H_2O qui émettent dans l'infrarouge (refroidissement). A l'équilibre radiatif, le chauffage est en équilibre avec le refroidissement qui est déterminé par la température locale. Lorsqu'une perturbation extérieure est appliquée au système, l'équilibre est perturbé et la température s'ajuste pour rétablir l'équilibre. La faible densité de l'air dans la stratosphère permet au système de revenir rapidement à l'état d'équilibre radiatif. Ce nouvel état d'équilibre est restauré dans la stratosphère en perturbant le profil de température, et donc en modifiant l'énergie rayonnée. Le forçage radiatif à la tropopause est donc calculé après avoir déterminé le nouveau profil de température de la stratosphère mais en gardant constant le profil de la température dans la troposphère. Les termes de chauffage/refroidissement, qui sont associés à la circulation atmosphérique et qui peuvent être très significatifs localement, sont aussi maintenus constants. Les changements de circulation atmosphérique associés au nouveau profil de température sont considérés comme une réponse du système climatique et ne sont donc pas pris en compte lors des ajustements de température. Cette méthode de calcul, appelée FDH pour *fixed dynamical heating*, est souvent utilisée pour déterminer le forçage radiatif ajusté. Lorsque cet ajustement de la stratosphère n'est pas appliqué, le forçage est qualifié de

forçage instantané. Notons qu'après l'ajustement FDH, les forçages à la tropopause et au sommet de l'atmosphère sont égaux. Le bilan radiatif global à travers toute l'atmosphère est rééquilibré seulement après réponse du système climatique.

1.2.2.2 Impact de l'ozone

Comme nous l'avons mentionné précédemment, l'absorption du rayonnement ultraviolet solaire par l'ozone constitue la principale source de chauffage de la stratosphère. L'ozone est donc un constituant clé de l'équilibre radiatif de la moyenne atmosphère. Toute évolution de sa concentration s'accompagne d'une variation de la température et donc de la circulation atmosphérique. Les variations de l'ozone stratosphérique peuvent aussi modifier l'équilibre radiatif à la tropopause et se répercuter sur la température de surface. Les dernières estimations indiquent que la réduction de l'ozone stratosphérique de ces dernières décennies serait responsable d'un forçage radiatif d'environ $-0,05 \pm 0,1 \text{ W.m}^{-2}$ [IPCC *et al.*, 2007].

Notons que l'ajustement de la température stratosphérique joue un rôle particulièrement important dans le cas de l'ozone stratosphérique. En effet trois mécanismes de forçages radiatifs distincts doivent être pris en compte dans le cas de l'ozone stratosphérique :

- 1) La diminution de l'ozone a pour effet de laisser pénétrer davantage le rayonnement solaire jusqu'à la troposphère, forçage positif.
- 2) En l'absence d'ajustement de la température, la diminution d'ozone s'accompagne d'une réduction de l'émission infrarouge vers la surface, forçage négatif.
- 3) Lorsque l'ajustement de la température stratosphérique est appliqué, la diminution de l'absorption locale du rayonnement solaire par l'ozone stratosphérique entraîne un refroidissement de la basse stratosphère. Ce refroidissement provoque une réduction de l'émission de corps noir vers la surface, forçage négatif.

Les effets 2 et 3 se combinent et dominent l'effet 1, de telle sorte que le forçage radiatif global de l'ozone stratosphérique est négatif. Ce forçage est distribué géographiquement de manière assez hétérogène et atteint près de -1 W.m^{-2} dans l'hémisphère sud où la diminution de l'ozone est la plus importante [IPCC *et al.*, 2007].

1.2.2.3 Impact de la vapeur d'eau

La vapeur d'eau est le principal gaz à effet de serre et elle joue un rôle important dans la chimie et le bilan radiatif atmosphérique. La principale source de vapeur d'eau stratosphérique est son entrée à la tropopause tropicale et l'oxydation du méthane. La variabilité de l'entrée de la vapeur d'eau dans la stratosphère est contrôlée par les variations de la température à la tropopause tropicale. La tendance de la vapeur d'eau entre 1980 et 2008 est de $0,03 \pm 0,005 \text{ ppmv.an}^{-1}$ [Scherer *et al.*, 2008]. A la fin de l'année 2000, la teneur en vapeur d'eau stratosphérique subit une forte diminution dans la basse stratosphère qui est cohérente avec les variations de la température à la tropopause tropicale. Selon les observations satellitaires HALOE, cette chute correspond à une diminution de 0,5 ppmv soit environ

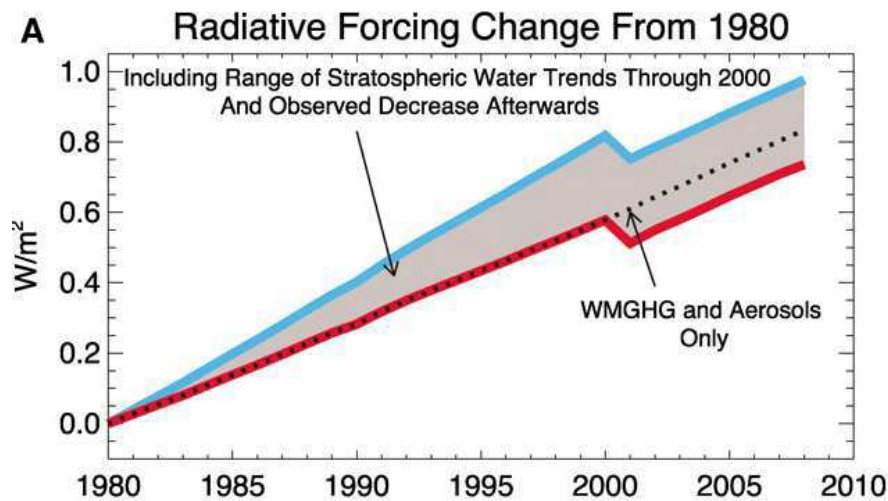


Fig. 6. — Evolution temporelle (1980-2008) du forçage radiatif induit par l'évolution des concentrations des gaz à effet de serre (well-mixed greenhouse gases, WMGHG) et d'aérosols (courbe noire pointillée). La région grisée indique la contribution des changements de la vapeur d'eau stratosphérique dans ce forçage radiatif. La courbe rouge correspond à une tendance nulle de la vapeur d'eau entre 1980 et 2008 avec une chute de la teneur en vapeur d'eau de 0,5 ppmv en 2000. La courbe bleue correspond à une tendance de l'ordre de 0,5 ppmv.décennie⁻¹ avec une chute de la teneur en vapeur d'eau de 0,5 ppmv en 2000 [Solomon et al., 2010].

10% de la teneur moyenne [Solomon et al., 2010]. Les changements de la vapeur d'eau conduisent à un forçage radiatif significatif en surface [WMO, 2011]. Une augmentation de la vapeur d'eau stratosphérique conduit à un refroidissement de la basse stratosphère et à un réchauffement de la troposphère. La Figure 6 présente l'évolution du forçage radiatif d'un mélange de gaz à effet de serre et d'aérosols entre 1980 et 2008 et la contribution des changements de la vapeur d'eau stratosphérique sur ce forçage radiatif. La Figure 6 montre qu'une augmentation linéaire de 1 ppmv.décennie⁻¹ de la vapeur d'eau entre 1980 et 2008 conduit à un forçage radiatif de l'ordre de 0,24 W.m⁻². La Figure 6 montre également que la chute de 2001 a un effet non négligeable sur le forçage radiatif et induit une diminution du taux de réchauffement d'environ 25%. Ainsi, les changements de la vapeur d'eau stratosphérique perturbent le climat : l'augmentation de la vapeur d'eau dans les années 80 et 90 a accentué la tendance au réchauffement global alors que la chute de 2001 de la teneur en vapeur d'eau a contribué à l'affaiblissement du réchauffement global.

1.3 Problématiques et objectifs spécifiques de la thèse

1.3.1 Problématiques

Pour améliorer les études sur l'ozone des missions satellitales ont été mises en place. Lancé en 1978, l'instrument satellitaire TOMS (*Total Ozone Mapping Spectrometer*) est le premier instrument satellite qui a permis de visualiser l'extension spatiale du trou d'ozone en Antarctique et de suivre son

évolution au cours des années. Depuis, d'autres satellites ont été lancés, dont le satellite UARS (*Upper Atmosphere Research Satellite*) lancé en 1991, qui a permis de confirmer le rôle clé des composés chlorés dans la destruction de l'ozone stratosphérique. L'accès des mesures sur l'échelle planétaire et une couverture de la haute stratosphère est l'atout majeur des observations satellitaires. Cependant, les mesures effectuées depuis le sol leur sont complémentaires et indispensables pour valider leur qualité. C'est donc l'ensemble des mesures depuis le sol et par satellite qui assurent une surveillance globale, continue et fiable de la stratosphère.

Suite à l'émergence des observations variées et aux facilités de stockage numérique, des réseaux internationaux regroupent au sein d'une même unité les différentes mesures de la composition chimique stratosphérique. Par exemple, le NDACC (*Network for Detection of Atmospheric Composition Change*), crée en 1991, est un réseau international de surveillance sur le long terme de la stratosphère et de la haute troposphère. Il a pour objectif la détection des changements d'origine naturelle ou anthropique de la composition chimique et de la température ainsi que les interactions entre la chimie et le climat. Il regroupe les mesures d'une cinquantaine de stations géophysiques ainsi que d'une centaine de campagnes.

Parallèlement à la mise en place de campagnes et de réseaux de mesures sur de la surveillance de l'ozone stratosphérique, des outils numériques sont développés. Depuis une quinzaine d'années, la communauté scientifique étudiant le climat et celle étudiant l'atmosphère moyenne en particulier la couche d'ozone collaborent de plus en plus étroitement. L'ozone stratosphérique et le climat peuvent s'influencer mutuellement par le biais de mécanismes dynamiques, chimiques et radiatifs et de rétroactions complexes. Il est parfois difficile d'identifier les causes et les effets dans les chaînes de réponses à une perturbation initiale donnée. Pour cette raison, la plupart des grandes institutions de recherche sur l'atmosphère, l'ozone et le climat se sont lancées dans le développement de modèles numériques, les modèles de chimie-climat (CCM). Ces modèles de chimie-climat permettent un véritable couplage entre la chimie, le rayonnement et la dynamique de l'atmosphère.

Le programme SPARC (*Stratospheric Processes And their role in Climate*) a initié en 2003 un programme d'intercomparaison et de validation des modèles de chimie-climat, appelé CCMVal (*Chemistry-Climate Model Validation Activity*). Cette activité a pour but d'améliorer la compréhension des modèles de chimie-climat et des couplages chimie-dynamiques à travers une évaluation de la représentation des processus dynamiques, chimiques et radiatifs. Le premier volet de cette activité, CCMVal-1, a été un support pour le rapport WMO [2007] et ces premiers résultats ont permis de faire un état de l'art sur la modélisation de l'évolution passée et future de la couche d'ozone et des phénomènes associés [Eyring et al., 2006, 2007; Son et al., 2008; Struthers et al., 2009; Scinocca et al., 2010; Karpechko et al., 2010; Forster et al., 2011]. Dans le deuxième volet de cette activité, CCMVal-2, la composition chimique stratosphérique et l'évolution future de la couche d'ozone sont largement analysées [Austin et al., 2010a,b; Eyring et al., 2010; CCMVal, 2010; WMO, 2011]. La majeure partie des évaluations et des comparaisons des modèles de chimie-climat sont climatologiques, c'est à dire des moyennes saisonnières sur des longues séries temporelles.

1.3.2 Objectifs spécifiques

L'objectif principal de cette thèse est d'évaluer la capacité des modèles de chimie-climat à reproduire les variations temporelles et la variabilité inter-annuelle de la composition chimique stratosphérique, particulièrement de l'ozone et de la vapeur d'eau. Cette thèse analyse les simulations d'une dizaine de modèles de chimie-climat participant à l'activité CCMVal-2. Pour réaliser cette évaluation, les simulations de modèles de chimie-climat sont comparées à des observations. Tout au long de cette thèse, les simulations des modèles de chimie-climat sont évaluées sous forme de moyenne de modèles.

Dans le premier chapitre de résultats (chapitre 4), l'objectif est d'examiner la faculté des modèles de chimie-climat à reproduire la variabilité temporelle de la composition chimique stratosphérique et particulièrement la variabilité inter-annuelle induite par les forçages externes (solaire, aérosols volcaniques, QBO, ENSO et tendance). Au lieu d'utiliser les données satellitaires en moyenne zonale qui sont nécessairement limitées dans la durée, cette évaluation utilise les longues séries temporelles d'observations du réseau atmosphérique NDACC (*Network for the Detection of Atmospheric composition Change*). La base de données NDACC offre de longues séries temporelles et un large panel d'espèces chimiques, mais avec un échantillonnage spatial limité bien que les stations couvrent les grandes régions (polaires, moyennes latitudes, tropiques). Les espèces étudiées dans ce chapitre sont l'ozone, les espèces à longue durée de vie (CH_4 et N_2O), les espèces azotées (NO_2 et HNO_3) et les espèces chlorées (HCl et ClONO_2). Bien que différentes régions soient considérées, cette évaluation est très locale, c'est à dire que l'étude est réalisée à l'aide des mesures d'une station en comparaison avec des simulations numériques au-dessus de cette station (*i.e.* pour une latitude et une longitude fixées). Notez qu'en général, l'évaluation des CCM a été réalisée en moyenne zonale. L'aspect local permet de prendre en compte les déviations à la symétrie zonale et celle-ci peut jouer un rôle important dans la variabilité temporelle sur certains sites de mesures. L'accent est porté sur l'évaluation de la réponse des modèles de chimie-climat aux forçages externes. Nous ne cherchons pas nécessairement à diagnostiquer les mécanismes complexes et multiples entre les forçages externes et les réponses de la composition chimique stratosphérique à ces forçages mais de quantifier le lien entre les forçages externes et ces réponses.

Dans un second chapitre de résultats (chapitre 5), nous nous sommes intéressés à évaluer la capacité des modèles à reproduire les variations temporelles de la vapeur d'eau stratosphérique. La vapeur d'eau joue un rôle important dans le bilan radiatif et indirectement sur la chimie de l'ozone (section 1.2.2.3). Pour ces raisons, il est important que les modèles de chimie-climat soient capables de reproduire cette variabilité temporelle de la vapeur d'eau. Nous nous sommes aussi focalisés sur la capacité des modèles de chimie-climat à reproduire des fortes variations dans la teneur stratosphérique de la vapeur d'eau, comme la brusque chute observée en 2001. Dans un premier temps, nous avons analysé la longue série de mesures sondes de Boulder et celles des modèles selon plusieurs diagnostics pour étudier la variabilité générale de la vapeur d'eau stratosphérique. Puis, nous nous sommes principalement intéressés à la capacité des modèles de chimie-climat à reproduire des variations rapides de la composition chimique stratosphérique.

Dans le dernier chapitre de résultats (chapitre 6), nous avons étudié les projections des modèles de chimie-climat sur l'évolution future de l'ozone et sur son forçage radiatif. Au cours des dernières

décennies, l'augmentation de la charge en espèces chlorées et bromées dans la stratosphère a entraîné la diminution de la colonne d'ozone. Suite au protocole de Montréal et à ses amendements, les constituants appauvrisseurs d'ozone d'origine anthropique contenant du chlore et du brome ne sont plus émis en surface et leur charge stratosphérique a commencé à diminuer à la fin du 20^{ème} siècle. Les projections futures de la colonne d'ozone stratosphérique montrent que la teneur en ozone stratosphérique devrait retrouver ses valeurs pré-industrielles dans la seconde moitié du 21^{ème} siècle. Nous avons d'abord analysés les projections d'ozone stratosphérique et leur cohérence parmi les modèles. Puis nous avons étudié l'évolution du forçage radiatif et son lien avec l'évolution de la colonne d'ozone.

Chapitre 2

Outils

Sommaire

2.1	Modèles de Chimie-Climat (CCM)	38
2.1.1	Définition d'un CCM	38
2.1.2	Activité CCMVal	39
2.1.2.1	Simulations	39
2.1.2.2	Forçages externes	41
2.1.2.3	Description des principales paramétrisations des CCM	46
2.1.2.4	Evaluation climatologique des CCM	47
2.2	Jeux d'observations	58
2.2.1	Observations par télédétection du sol	58
2.2.2	Observations in situ	60
2.2.3	Observations satellitales	61

Ce chapitre décrit les modèles numériques et les observations, qui sont utilisés dans cette thèse et qui nous permettent d’analyser l’évolution de la composition stratosphérique, en particulier l’ozone stratosphérique. Dans une première section, nous définissons les modèles de chimie-climat (section 2.1.1) puis nous présentons l’activité CCMVal (section 2.1.2). Dans la seconde section, nous décrivons les trois types d’observations utilisées lors des comparaisons avec les modèles de chimie-climat : par télédétection sol (section 2.2.1), in situ (section 2.2.2) et satellitaires (section 2.2.3).

2.1 Modèles de Chimie-Climat (CCM)

Depuis une quinzaine d’années, la communauté scientifique étudiant le climat et celle étudiant l’atmosphère moyenne, en particulier la couche d’ozone, collaborent de plus en plus étroitement. La plupart des grandes institutions de recherche sur l’atmosphère, l’ozone et le climat se sont lancées dans le développement de modèle numérique, les modèles de chimie-climat (CCM).

2.1.1 Définition d’un CCM

Jusqu’à récemment, la plupart des études de modélisation de grande échelle de l’atmosphère étaient réalisées à partir de deux types de modèle : les modèles de circulation générale (GCM) et les modèles de chimie-transport (CTM). Les GCM et les CTM ne prennent que partiellement en compte les interactions entre les processus chimiques, dynamiques et radiatifs.

Les GCM calculent les champs de température et de vent mais utilisent des climatologies pour la composition chimique dans les calculs de transferts radiatifs et des taux de chauffage. Dans ces conditions, la réponse de la dynamique de l’atmosphère à une perturbation initiale est explicitement calculée par les GCM mais les effets engendrés sur les champs de concentration des gaz ou des aérosols actifs sur le plan radiatif (*i.e.* qui interagissent avec le rayonnement solaire ou terrestre) sont ignorés, notamment les effets liés à la chimie et au transport. Par exemple, dans le cas d’une perturbation initiale de la composition chimique (gaz ou aérosols), la réponse dynamique ne peut modifier la perturbation initiale qui est fixée. En résumé, la dynamique ne peut pas influencer la chimie.

En revanche, les CTM calculent la composition chimique mais les champs de température et de vent sont spécifiés, à priori, indépendamment des champs de concentration des gaz radiatifs calculés par le modèle. Les CTM prennent en compte les couplages d’origine chimique entre les espèces radiatives et l’effet du transport sur la composition chimique mais pas l’effet des variations de composition chimique sur la dynamique par l’intermédiaire des composés actifs sur le plan radiatif. En résumé, la chimie ne peut pas influencer la dynamique. Néanmoins, l’impact d’une perturbation de la composition chimique sur le climat peut être estimé à partir du concept de forçage radiatif.

Ces 10 dernières années, l’évolution grandissante des moyens de calcul a permis le développement de modèle de chimie-climat (CCM) qui couple un GCM et un module de chimie [Austin and Butchart, 2003; Eyring et al., 2006]. Au lieu d’utiliser des climatologies des gaz radiatifs dans les calculs du transfert radiatif, le CCM utilise les champs de concentration calculés par le modèle lui-même, ce qui

permet un véritable couplage entre la chimie, le rayonnement et la dynamique. Il est ainsi possible de calculer la réponse finale de l’atmosphère à une perturbation de la composition chimique ou à un forçage quelconque en prenant en compte le plus possible de rétroactions présentes dans l’atmosphère.

2.1.2 Activité CCMVal

Suite aux progrès importants de modélisation du climat et, en particulier, des interactions chimie-climat avec le développement des CCM, le programme SPARC (*Stratospheric Processes And their role in Climate*) a initié en 2003 la mise en place d’un programme d’intercomparaison et de validation des modèles de chimie-climat, appelé CCMVal (*Chemistry-Climate Model Validation Activity*). Cette activité a pour but d’améliorer la compréhension des CCM et des couplages chimie-dynamiques à travers une évaluation de la représentation des processus dynamiques, chimiques et radiatifs. Le premier volet de cette activité, CCMVal-1, a aussi été un support pour le rapport WMO [2007] et ces premiers résultats ont permis de faire un état de l’art sur la modélisation de l’évolution passée et future de la couche d’ozone et des phénomènes associés [Eyring et al., 2006, 2007; Son et al., 2008; Struthers et al., 2009; Scinocca et al., 2010; Karpechko et al., 2010; Forster et al., 2011]. Les processus clés du transport, du radiatif et de la dynamique dans les CCM ont été particulièrement diagnostiqués [Austin et al., 2008; Gettelman et al., 2009; Tourpali et al., 2009; Butchart et al., 2010]. Dans le deuxième volet de cette activité, CCMVal-2, l’évolution future de la couche d’ozone est largement analysée [Austin et al., 2010a,b; Eyring et al., 2010] et un plus grand nombre d’études ont été effectuées notamment sur les interactions haute troposphère/basse stratosphère [Hegglin et al., 2010; Gettelman et al., 2010; Gerber et al., 2010] ainsi que des analyses sur la variabilité stratosphérique [Oman et al., 2010a,b; CCMVal, 2010; Butchart et al., 2011]. Pour obtenir une homogénéité dans l’analyse des résultats les forçages externes sont imposés dans les simulations, les constantes cinétiques chimiques sont recommandées, et une même gamme de diagnostics est exigée.

Les principaux résultats de cette thèse sont issus d’une analyse des simulations de CCM participant au projet CCMVal-2. La Table 1 liste les CCM utilisés ainsi que leur institution, leurs références principales et les simulations utilisées. Le choix de ces modèles dépendait des champs et diagnostics disponibles dans la base de données CCMVal.

2.1.2.1 Simulations

Pour avoir une cohérence dans les résultats, le programme CCMVal a imposé des simulations de référence : REF-B1 et REF-B2.

REF-B1

Le REF-B1 est une simulation du passé de 1960 à 2006 dont les forçages sont issus des séries temporelles d’observations [Eyring et al., 2006]. Ce long scénario de référence fournit un cadre idéal pour l’évaluation des modèles du fait du grand nombre d’observations disponibles. Cette simulation de référence permet d’évaluer la capacité des modèles à reproduire l’évolution passée de la couche

Modèle de Chimie-Climat	Institution	Référence	Simulation
AMATRAC3	NOAA, Etats-Unis	<i>Austin and Wilson</i> [2006]	REF-B1
CAM3.5	NCAR, Etats-Unis	<i>Lamarque et al.</i> [2008]	REF-B1
CCSRNIES	NIES, Japon	<i>Akiyoshi et al.</i> [2009]	REF-B1 REF-B2
CMAM	Environemt Canada, Canada	<i>Scinocca et al.</i> [2008]	REF-B1 REF-B2
GEOSCCM	NASA GSFC, Etats-Unis	<i>Pawson et al.</i> [2008]	REF-B2
LMDz-REPOBUS	IPSL, France	<i>Jourdain et al.</i> [2008]	REF-B1 REF-B2
MRI	JMA, Japon	<i>Shibata and Deushi</i> [2008a,b]	REF-B2
SOCOL	PMOD/WRC, Suisse	<i>Schraner et al.</i> [2008]	REF-B1 REF-B2
ULAQ	Université d'Aquila, Italie	<i>Pitari et al.</i> [2002]	REF-B1 REF-B2
UMSLIMCAT	Université de Leeds, Royaume-Uni	<i>Tian and Chipperfield</i> [2005]	REF-B2
WACCM	NCAR, Etats-Unis	<i>Garcia et al.</i> [2007]	REF-B2

Tab. 1. – Listes de différents CCM utilisés avec leur institution, leur référence et les simulations utilisées dans cette thèse.

d'ozone et les processus de destruction de cette espèce. Cette simulation inclut les forçages naturels et anthropiques résultant des variations de la concentration des gaz en traces de l'atmosphère, de l'activité solaire, des éruptions volcaniques, des températures de la surface de la mer et de la couverture de glace de mer. Les rapports de mélange en surface des gaz à effet de serre additionnels (N_2O , CH_4 et CO_2) entre 1950 et 1996 sont issus du scénario A1B de l'IPCC (*Intergovernmental Panel on Climate Change*) [IPCC et al., 2007] alors qu'entre 1997 et 2006 elle provient des observations de la NOAA (*National Oceanic and Atmospheric Administration*). Cette dernière série est ajustée pour être en accord avec les données IPCC. Les rapports de mélange des substances halogénées destructrices d'ozone (CFC et halons) sont prescrites en surface selon le scénario A1 du rapport WMO [2007]. Les températures de surface de la mer et la concentration de glace de mer sont imposées par les données HasISST1 (Rayner et al, 2006). Les densités de surface des aérosols stratosphériques sont issues d'une climatologie composite des observations satellitales SAGE I (*Stratospheric Aerosol and Gas Experiment*), SAGE II, SAM II (*Surface Aerosol Microscope*) et SME (*Solar Meso- sphere Explorer*) [Thomason and Peter, 2006]. Les densités de surface d'aérosols (SAD) sont nécessaires aux calculs de chimie hétérogène. D'autre part, la plupart des modèles prennent aussi en compte les effets radiatifs des aérosols qui généralement conduisent à un réchauffement de la stratosphère à la suite des éruptions volcaniques ; ces effets peuvent être paramétrés simplement dans certains modèles en spécifiant des taux de chauffage à priori à partir d'observations d'aérosols volcaniques. L'activité solaire est définie par l'irradiance spectrale solaire résolue quotidiennement et reconstruite à partir d'indicateurs solaires selon la méthode de *Lean et al.* [2005]. Certain des modèles qui ne génèrent pas spontanément une oscillation quasi-biennale (QBO) imposent une QBO en forçant les champs de vents zonaux à l'équateur. Les émissions de précurseur d'ozone et d'aérosols de 1960 à 1999 sont issus d'un ensemble

de données du projet RETRO (*Reanalysis of the Tropospheric chemical composition*) [Schultz, 2007]. A partir de 2000, la tendance de l'ensemble de ces précurseurs est estimée puis étendue jusqu'à 2006 d'après le scénario IIASA SRES [IPCC et al., 2007].

REF-B2

Le REF-B2 est une simulation couvrant la période de 1960 à 2100 utilisant seulement des forçages anthropiques. Les forçages naturels sont fixes ce qui veut dire que la distribution des aérosols stratosphériques et l'activité solaire sont maintenues constantes durant toute la période de simulation. L'objectif de cette simulation est de produire une bonne estimation de l'évolution future de l'ozone stratosphérique et des changements climatiques en réponse à la diminution des concentrations des gaz halogénés suivant le scénario A1 ajusté et à l'évolution des concentration des gaz à effet de serre suivant le scénario A1B SRES [IPCC et al., 2007; Eyring et al., 2007]. Il est important de forcer les CCM avec des longues séries temporelles homogènes et continues couvrant à la fois le passé et le futur, afin d'éviter des artefacts de discontinuité aussi bien en terme de valeur absolue qu'en terme de variabilité. Cette simulation permet d'avoir une vision globale sur les processus de reconstruction de la couche d'ozone. Le scénario A1B [IPCC et al., 2007] est basé sur des hypothèses démographiques tout au long du 21^{ème} siècle, telles qu'une rapide croissance économique, une augmentation de la population jusqu'en 2050 et une baisse par la suite, l'adoption globale de technologies efficaces et d'une dépendance équilibrée entre les combustibles fossiles et non-fossiles comme source d'énergie. En comparaison à d'autres scénarios de l'IPCC, ce scénario conduit à une augmentation modérée de la concentration des gaz à effet de serre (GES) et donc du forçage radiatif anthropique. L'évolution de la concentration de surface des substances destructrices d'ozone est tirée du scénario A1 ajusté du WMO [2007] qui prend en compte la réduction des émissions des chlorofluorocarbones (CFC) et des halons suite au protocole de Montréal et à ses amendements. La distribution des aérosols stratosphériques est fixée à celle de fond de l'année 2000 provenant de la climatologie de SAD [Thomason and Peter, 2006] ; elle correspond à des niveaux de fond, c'est à dire à une absence d'aérosols volcaniques stratosphériques. Pour avoir une bonne homogénéité des séries de température de surface de la mer et de la concentration de la glace de mer, ces séries sont calculées par un modèle couplé océan-atmosphère forcé selon le scénario A1B. Comme pour le REF-B1, les émissions de précurseur d'ozone et d'aérosols entre 1960 et 1999 sont issus d'un ensemble de données du projet RETRO [Schultz, 2007]. A partir de 2000, l'ensemble de ces précurseurs est estimé puis étendu jusqu'en 2100 d'après le scénario IIASA SRES.

2.1.2.2 Forçages externes

Comme pour les simulations, les forçages externes sont imposés. Ils sont presque identiques pour tous les CCM participant au projet.

La température de surface de la mer et la concentration de glace de mer

Le REF-B1 utilise les analyses HadISST1 pour les températures de surface de mer et les concentrations de glace de mer, présentée sur la Figure 7a). Cette série débute en 1870 [Rayner *et al.*, 2006]. Les données montrent un réchauffement distinct à partir des années 70 avec une augmentation comprise entre 0,2 et 0,3 K par rapport à la moyenne 1950-1970. Le CCM LMDz-REPROBUS utilise des données légèrement différentes pour le REF-B1, les données AMIP II qui sont cohérentes avec les données HadISST1 [Taylor *et al.*, 2000].

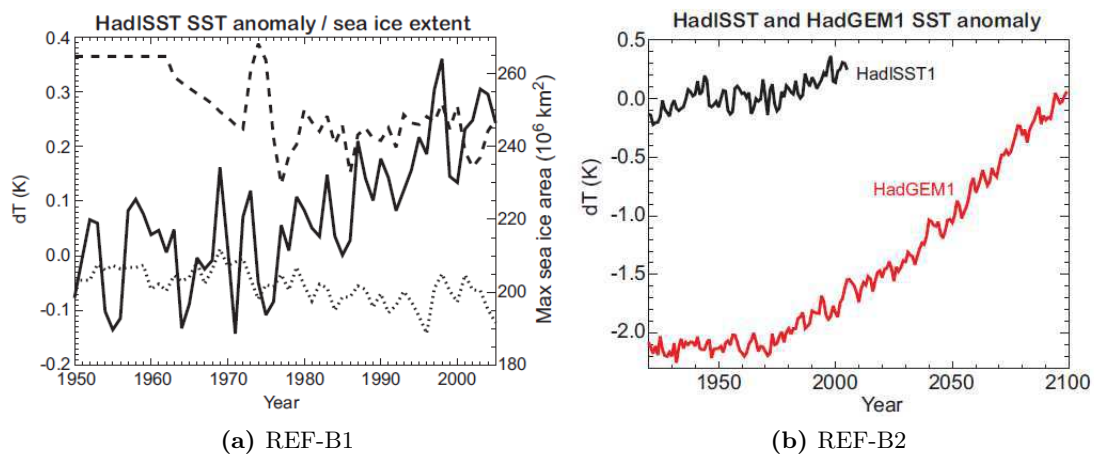


Fig. 7. — (a) Evolution temporelle (1950-2005) les anomalies annuelles relative à la moyenne de 1950 à 1969 pour de la température de surface de mer dans les données HadISST1 (ligne pleine), de la couverture de glace de mer en Antarctique (ligne tiretée) et Arctique (ligne pointillée). (b) Evolution temporelle (1930-2100) de l'anomalie relative à la moyenne entre 1950 et 1969 des données HadISST1 pour la température de surface de mer pour les données HadISST1 (ligne noire) et HadGEM1 SSTs (ligne rouge) [CCMVal, 2010].

Pour le REF-B2, les jeux de données utilisés par les modèles sont plus variés. La Figure 7b montre un exemple de comparaison entre 2 jeux de données souvent utilisées, HadGEM1 et HadISST1. La moyenne globale des données HadGEM1 SSTs manifeste un biais froid de 2 K par rapport aux données HadISST1 [Johns *et al.*, 2006]. Le CCM CMAM est couplé interactivement à un modèle d'océan et est donc le seul modèle à calculer ses propres températures de surface de mer (*sea surface temperature* SST). Les CCM GEOSSCM, ULAQ et WACCM utilisent les données CCSM3 [Arora *et al.*, 2009] alors que UMSLIMCAT et UMUKCA-METO utilisent les données HadGEM1. Le CMM SOCOL utilise une combinaison de HadSSTT1 et HadGEM1 ce qui introduit des discontinuités. Le CCM LMDz-REPROBUS utilise les conditions de surface de mer calculées par le modèle couplé de l'IPSL (AOGCM) forcé selon le scénario A1B [Dufresne *et al.*, 2005].

Substances destructrices d'ozone et les gaz à effet de serre à longue durée de vie

Les Figures 8 présentent l'évolution temporelle de la charge en chlore et en brome total, et des concentrations de surface des principaux gaz à effet de serre d'après les scénarios A1 ajusté et A1B

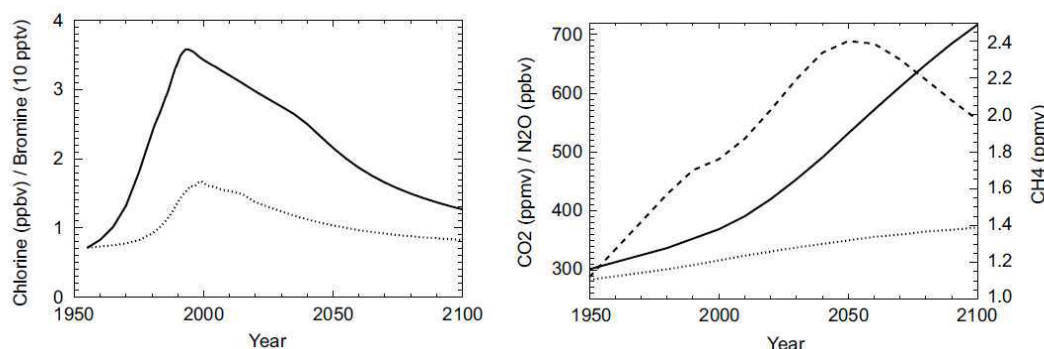


Fig. 8. – A gauche, évolution temporelle (1950-2100) des émissions en surface du chlore organique (ligne pleine) et des émissions en surface du brome organique (ligne pointillée) définies pour le scénario A1. A droite, évolution temporelle (1950-2100) des émissions de surface du CO_2 (ligne pleine), des émissions en surface du N_2O (ligne pointillée) et des émissions en surface de CH_4 (ligne tiretée) définies par le scénario SRES A1B [CCMVal, 2010].

SRES [IPCC et al., 2007]. Les concentrations des substances halogénées destructrices d’ozone augmentent brutalement pendant les années 1970 et 1980. Ces concentrations atteignent leur maximum à la fin des années 90 avec un pic en chlore totale correspondant à approximativement 5-6 fois le niveau des années 50 lorsque les émissions de CFC et halons étaient négligeables. Durant la même période, la concentration en brome a doublé, avec également un pic dans les années 1990. Pour le 21^{ème} siècle, d’après le scénario A1 ajusté pour être en accord avec le protocole de Montréal et ses amendements, un déclin continu des concentrations de chlore et de brome est prévu. Cette diminution est considérablement plus lente que la brusque augmentation du 20^{ème} siècle. Par contraste dans le scénario A1B décrivant l’évolution futur des gaz à effet de serre, la concentration en CO_2 augmente régulièrement pour atteindre un doublement de sa valeur en 2100 par rapport à celle de 1950. La concentration en N_2O suit la même tendance avec un taux de croissance plus faible alors que la concentration de CH_4 diminue à partir de 2050.

Aérosols volcaniques

L’évolution de la distribution des aérosols stratosphériques est tirée de la base de données SPARC, présentée sur la Figure 9, qui a été construite à partir des mesures des satellites SAGE (*Stratospheric Aerosol and Gas Experiment*) commencées en 1983. Dans la climatologie SPARC, les données avant 1983 sont construites sur l’hypothèse d’une concentration de fond (*i.e.* pas d’aérosols volcaniques) et pour le cas de l’éruption de Agung en 1963 la distribution des aérosols est hypothétiquement basée sur les éruptions postérieures [Thomason and Peter, 2006; Thomason et al., 2008]. Sur la Figure 9, les quatre grandes éruptions de la deuxième moitié du 20^{ème} siècle sont clairement visibles : Agung en 1963, El Chichon en 1982, Nevado del Ruiz en 1985 et le Mont Pinatubo en 1991. Un problème apparaît aux hautes latitudes de l’hémisphère sud durant l’hiver austral car le satellite ne peut pas faire la distinction entre les aérosols et les nuages stratosphériques polaires. Dans ce cas la densité de surface en aérosol est anormalement basse. Pour le REF-B1, seul le modèle SOCOL a éliminé ce

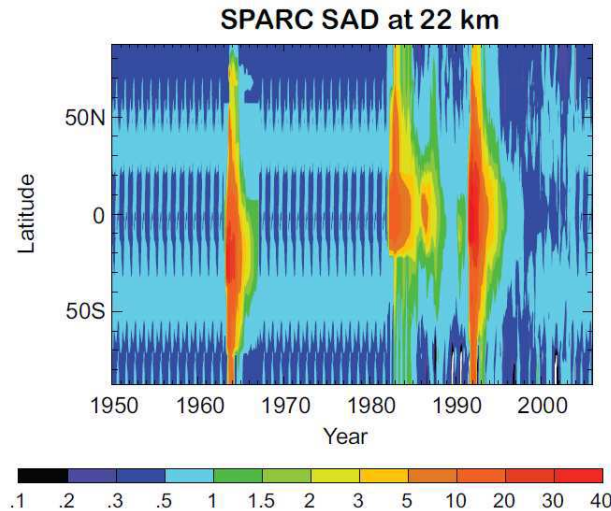


Fig. 9. — Coupe temps-latitude de la densité de surface des aérosols sulfatés à 22 km issue de la climatologie SPARC [Thomason and Peter, 2006].

problème car il utilise une combinaison des jeux de données SAGE et de la base de données GISS (Goddard Institute for Space Studies) [Schraner et al., 2008; Fischer et al., 2008] sinon tous les autres CCM utilisent la base de données SAGE. Pour le REF-B2, les CCM utilisent de manière cyclique la concentration de fonds de l'année 2000.

Du fait de leurs propriétés optiques, les aérosols interagissent avec le rayonnement et donc affectent les taux de chauffage dans la stratosphère et la troposphère, particulièrement pendant les périodes d'éruptions volcaniques [Sato et al., 1993]. La plupart des CCM prennent en compte ces effets mais les approches diffèrent. Le modèle CMAM utilise des taux de chauffage cohérents avec les données climatologiques SPARC alors que AMTRAC et CCSRNIES utilisent d'autres jeux de données tels que la base de données GISS pour calculer ces taux. Le CCM SOCOL utilise un mélange de différentes sources. Le CCM ULAQ simule directement la formation et l'évolution des aérosols en utilisant en entrée de leur modèle des estimations d'injection de SO_2 volcanique, puis le modèle calcule de manière interactive les taux de chauffage. Les deux CCM CAM3.5 et LMDz-REPROBUS ne prennent pas en compte les variations des taux de chauffage induits par les aérosols.

Oscillation quasi-biennale

La Figure 10 présente une coupe temps-pression du vent zonal (m.s^{-1}) issu d'observations de trois stations météorologiques tropicales (Canton Island (3°S - 172°W), Gan (1°S - 73°E) et Singapour (1°N - 104°E)). La zone encadrée en violet sur la Figure 10 indique le domaine vertical des observations; au dessus, les données sont extrapolées avec une vitesse de phase de 2 km.mois^{-1} au dessus de 10 hPa et 1 km.mois^{-1} en dessous de 70 hPa. Les CCM AMTRAC3, WACCM, UMUKCAMETO, MRI et UMSLIMCAT génèrent spontanément leur propre QBO, alors que CAM3.5, SOCOL, CCSRNIES et ULAQ génèrent une QBO en forçant leur champ de vent zonal dans les tropiques par des

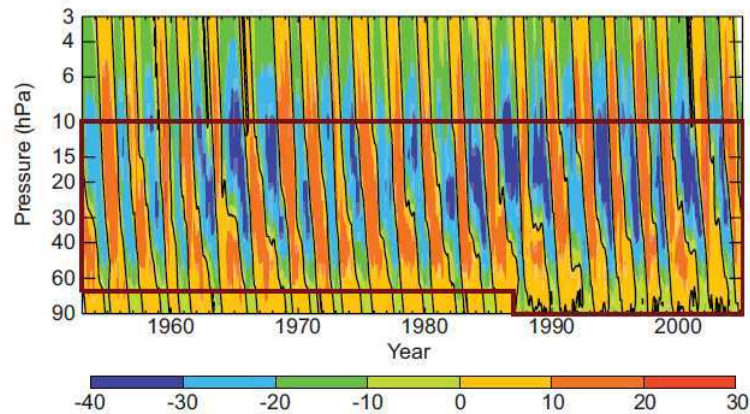


Fig. 10. — Coupe temps-pressure du vent zonal ($m.s^{-1}$) issu des observations à Canton Island, Gan et Singapore. La boîte violette montre le domaine verticale des observations ; en dehors de la boîte les données sont extrapolées avec une vitesse de phase de $2 km.mois^{-1}$ au dessus de 10 hPa et $1 km.mois^{-1}$ en dessous de 70 hPa [CCMVal, 2010].

analyses météorologiques. Les CCM CMAM, LMDz-REPROBUS et GEOSCCM n'ont pas de QBO.

Irradiance solaire

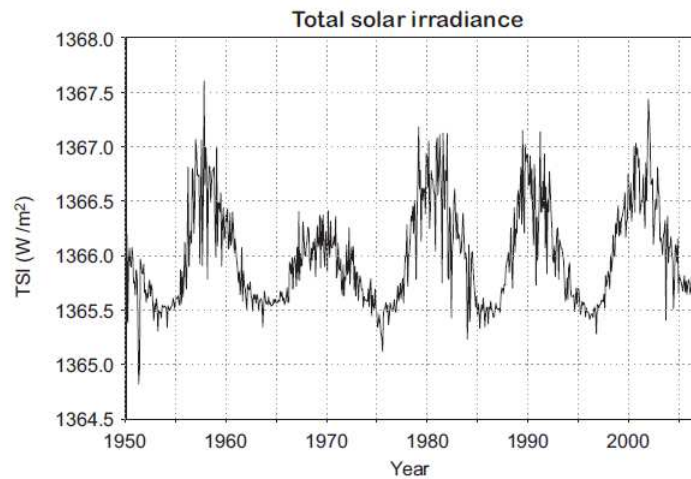


Fig. 11. — Evolution temporelle (1950-2005) de l'irradiance solaire totale ($W.m^{-2}$) [Lean et al., 2005].

La Figure 11 présente l'évolution de l'irradiance solaire totale reconstruite à partir d'indicateurs solaires [Lean et al., 2005]. Le cycle solaire à 11 ans est clairement visible. L'irradiance solaire totale fluctue d'environ $1 W.m^{-2}$ autour de sa valeur de référence de $1366 W.m^{-2}$. Cependant la variabilité est beaucoup plus importante dans les faibles longueurs d'ondes. Par exemple, dans l'UV vers 200 nm, l'irradiance varie d'environ 8% au cours du cycle à 11 ans. Comme le flux UV joue un rôle clé dans

la chimie de la stratosphère, en particulier celle de l’ozone, il est important de prendre en compte les variations spectrales pour le calcul des taux de photolyse et des taux de chauffage. A l’exception de ULAQ, tous les CCM résolvent spectralement le forçage solaire pour les calculs radiatifs et de photolyses en utilisant les reconstructions de l’évolution du spectre solaire de *Lean et al.* [2005].

2.1.2.3 Description des principales paramétrisations des CCM

Modèles Chimie Climat	GCM	Résolution Horizontale, Résolution verticale, Pression minimale	QBO	Température de surface de mer, Glace de mer	Variabilité solaire	Effet radiatif direct
AMATRAC3	AM3	200 km \sim 2°(lat) \times 2,5°(lon), L48, 0,017 hPa	Générée	HadISST1	Oui	Données GISS
CAM3.5	CAM	1,9°(lat) \times 2,5°(lon), L26, 3,5 hPa	Forcée	HadISST1	Oui	Non
CCSRNIES	CCSR/NIES AGCM 5.4g	T42 \sim 2,8°(lat) \times 2,8°(lon), L34, 0,012 hPa	Forcée	HadISST1	Oui	Données GISS
CMAM	AGCM3	T31 \sim 3,75°(lat) \times 3,75°(lon), L71, 0,00081 hPa	Non	HadISST1	Oui	Données SAGE
GEOSCCM	GEOS5	2°(lat) \times 2,5°(lon), L72, 0,015 hPa	Non	HadISST1	Non	Non
LMDz- REPOBUS	LMDz	2,5°(lat) \times 3,75°(lon), L50, 0,07 hPa	Non	AMIP II	Oui	Non
MRI	MJ98	T42 \sim 2,8°(lat) \times 2,8°(lon), L68, 0,01 hPa	Générée	CGCM 2.3.2	Oui	Données GISS
SOCOL	MAECHAN4	T30 \sim 2,8°(lat) \times 2,8°(lon), L39, 0,01 hPa	Forcée	HadISST1	Oui	Mélange de différents jeux d’observations
ULAQ	ULAQ-GCM	R6 \sim 11,5°(lat) \times 22,5°(lon), L26, 0,04 hPa	Forcée	HadISST1	Non	Injections de SO ₂ volcaniques
UMSLIMCAT	UM 4.5	2,5°(lat) \times 3,75°(lon), L64, 0,01 hPa	Générée	HadISST1	Oui	Non
WACCM	CAM	1,9°(lat) \times 2,5°(lon), L66, 6×10^{-6} hPa	Forcée	HadISST1	Oui	Données SAGE

Tab. 2. – Liste de modèles de chimie-climat avec leur modèle de circulation générale (GCM), leur résolution verticale et horizontale, leur pression minimal et les paramétrisations de leur forçage externes pour les simulations REF-B1.

Les modèles de chimie-climat utilisés dans cette thèse sont très largement décrits dans *Eyring et al.* [2006] ; *Morgenstern et al.* [2010]. Tous les modules majeurs des CCM (dynamique, chimique et radiatif) sont très largement détaillés dans le chapitre 2 du rapport *CCMVal* [2010]. Dans cette section, nous décrivons quelques caractéristiques de ces modèles ainsi que leur paramétrisation des forçages externes. La Table 2 liste le modèle de circulation générale (GCM), la résolution verticale et horizontale, la pression minimale et quelques paramétrisations des forçages externes des modèles de chimie-climat utilisés dans cette thèse. Certains modèles ont leur GCM en commun, c’est le cas pour CAM3.5 et WACCM. La résolution horizontale s’étend de 2° à 11,5° en latitude et de 2,5° à 22,5° en longitude.

Le nombre de niveaux verticaux varie entre 26 et 72 pour une pression minimale comprise entre 3,5 et 6.10^{-6} hPa. La représentation de l'oscillation quasi-biennale (QBO) est définie en 3 groupes : les modèles qui génèrent la QBO (AMTRAC.3, MRI et UMSLIMCAT), les modèles qui forcent les vents zonaux de la moyenne atmosphère aux tropiques (CMAM, CCSRNIES, SOLOL, ULAQ et WACCM) et les modèles qui n'ont pas de QBO (CMAM, GEOSCCM et LMDz-REPROBUS). Pour les simulations REF-B1, les modèles de chimie-climat utilisent les données HadISST1 pour la température de la surface de la mer et la concentration de glace de mer, à l'exception des modèles LMDz-REPROBUS et MRI. Pour les simulations REF-B2, les données utilisées pour la température de la surface de la mer et la concentration de glace de mer sont décrites dans la section 2.1.2.1. Tous les modèles de chimie-climat utilisés ont une variabilité solaire basée sur la méthode décrite dans *Lean et al.* [2005]. L'effet radiatif directe des aérosols stratosphériques et leur taux de chauffage n'est pas toujours pris en compte par les modèles de chimie-climat (CAM3.5, GEOSCCM, LMDz-REPROBUS et UMSLIMCAT). Les modèles AMTRAC, CCSRNIES et MRI utilisent les données GISS alors que les modèles CMAM et WACC utilisent la climatologie de SAD issue des observations SAGE. Le modèle SOCOL utilise un mélange de ces deux jeux d'observations. Le modèle ULAQ ne prend en compte que les injections de SO_2 des éruptions volcaniques et les taux de chauffage sont calculés de manière interactive à partir des aérosols.

2.1.2.4 Evaluation climatologique des CCM

Nous décrivons dans cette section une évaluation climatologique standard [*Eyring et al.*, 2006] des modèles de chimie climat. Les simulations des modèles de chimie climat sont issues de l'activité CCMVal-2. Nous présentons des diagnostics sur la température polaire, le transport et deux espèces réactives (HCl et l'ozone).

Température polaire

En raison de la dépendance en température de nombreux paramètres chimiques déterminant la distribution de l'ozone, il est important de modéliser correctement les champs de températures. La variation saisonnière de la température aux hautes latitudes est particulièrement importante pour modéliser les nuages stratosphériques polaires qui influencent la destruction de l'ozone polaire. Les Figures 12 présentent les anomalies climatologiques hivernales et printanières de température par rapport aux données ERA-40 aux hautes latitudes de l'hémisphère nord et sud. Dans l'hémisphère nord au dessus de 10 hPa, les variations des anomalies de température sont très grandes et sont comprises entre ± 9 K, à l'exception des modèles LMDz-REPROBUS qui présentent un biais chaud (≥ 10 K). En dessous de 10 hPa, les données ERA-40, NCEP (*National Centers for Environmental Prediction*) et UKMO (*United Kingdom Met office*) sont en très bon accord. Entre 100 et 10 hPa, le biais entre les modèles et les observations est le plus faible. Les modèles de chimie-climat sont compris entre l'écart type des données ERA-40, à l'exception des modèles CCSRNIES, ULTRAC, WACCM, E39CA et E39C. En dessous de 100 hPa, le biais des modèles augmente avec un maximum à 200 hPa. Dans l'hémisphère sud au dessus de 10 hPa, le biais des modèles est plus grand que dans l'hémisphère

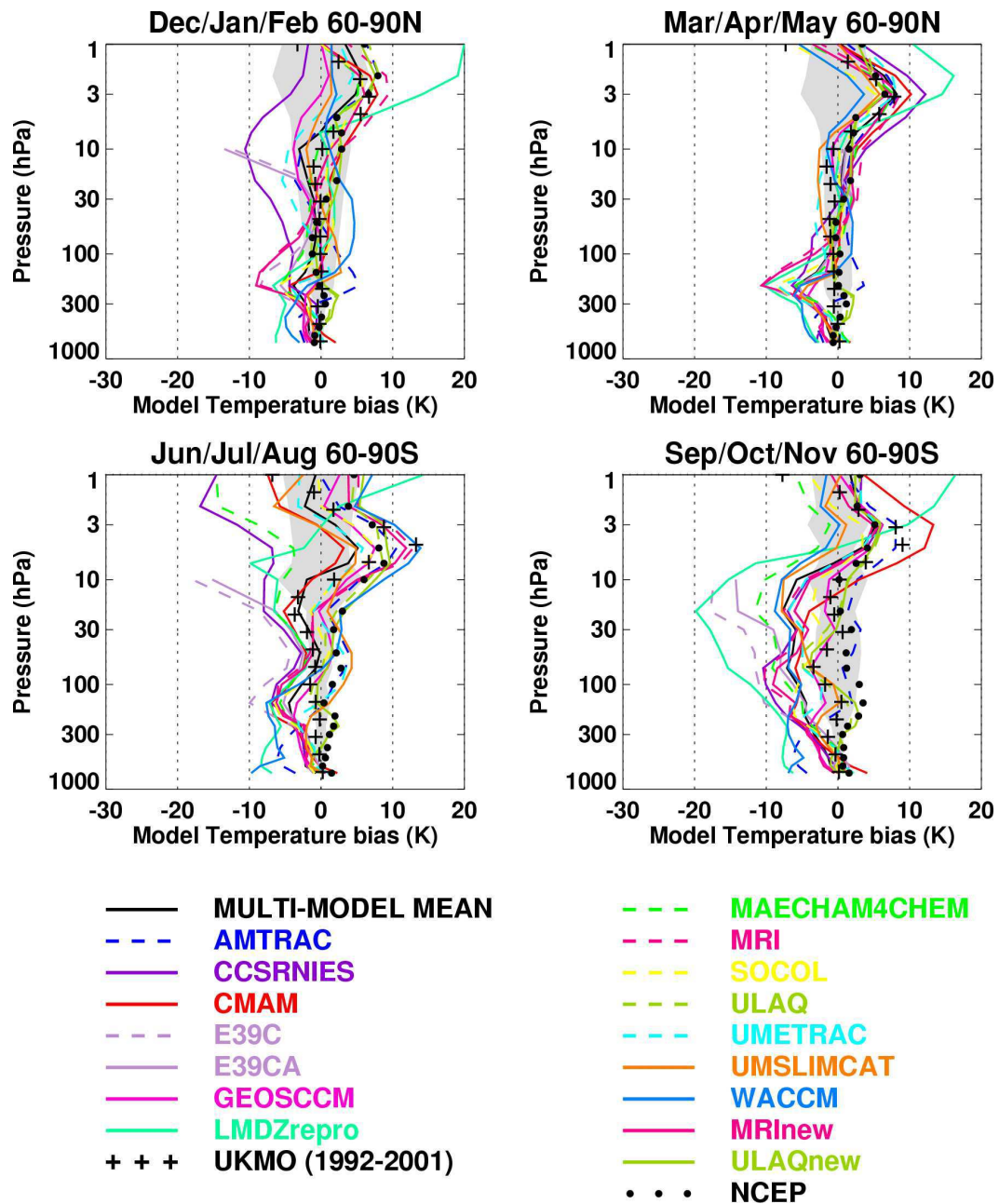


Fig. 12. — Anomalies de température par rapport aux données ERA-40 des climatologies moyennes de température pour les régions comprises entre 60°-90° N (en haut) et entre 60°-90° S (en bas) pour l'hiver (à gauche) et le printemps (à droite). Les climatologies des modèles de chimie-climat (courbes en couleur), des données ERA-40 et des données NCEP (rond noir) sont calculées entre 1980 et 1999, les climatologies de données UKMO (croix noire) sont calculées entre 1992 et 2001. La zone grisée correspond à plus ou moins l'écart type de la moyenne climatologique des données ERA-40 (communication du CCMVal).

nord aux mêmes altitudes, avec un maximum en dessous de 3 hPa. En dessous de 10 hPa en hiver, en moyenne le biais de températures des modèles est négatif avec deux maxima à 20 et 200 hPa de l'ordre de 6 K alors que les modèles UMUSLIMCAT, UMETRAC ont un faible biais positif. Au printemps, le biais de la température est plus fort et constant sur tous les niveaux de pression par rapport aux anomalies hivernales.

Le biais froid, pendant l'hiver et le printemps, s'accompagne d'une persistance du vortex polaire jusqu'en octobre/novembre. Ces biais froids négatifs conduisent également à une persévérance irréaliste des PSC dans les modèles. Ces deux conséquences s'accompagnent d'un trou d'ozone maintenu plus longtemps et parfois encore présent à la fin du printemps.

Transport

Le transport dans la stratosphère implique à la fois la circulation résiduelle et les processus de mélange horizontaux, qui peuvent être particulièrement inhomogènes. Une représentation réaliste du transport est cruciale pour la distribution des espèces chimiques. Il est possible d'obtenir des informations précieuses sur le transport simulé par le modèle en examinant la distribution des espèces à longue durée de vie (H_2O , CH_4 , N_2O , ...), la propagation verticale du cycle annuel de la vapeur d'eau équatoriale ou encore la distribution globale de l'âge de l'air.

Les Figures 13 présentent des moyennes climatologiques de profils verticaux à différentes latitudes et des variations latitudinales à 50 hPa de moyenne zonale mensuelle du rapport de mélange du méthane issu des modèles de chimie-climat et des observations HALOE. Les modèles de chimie-climat, montrent peu de différences entre eux et ils sont en bon accord avec les observations HALOE. Nous notons que la dispersion entre les modèles et celle par rapport aux observations HALOE sont plus fortes entre 100 et 10 hPa aux pôles. Sur les Figures 13a et 13c, les modèles UMSLIMCAT et UMIKCA-METO ont tendance à sous-estimer la teneur moyenne du méthane alors que les modèles CAM3.5 et E39CA surestiment le rapport de mélange du méthane. Les profils latitudinaux (Figure 13c et 13d) montrent un très bon accord des modèles avec les observations HALOE entre 60°S et 60°N , à l'exception des modèles UMIKCA-METO et UMIKCA-UCAM qui sous-estiment la teneur moyenne de méthane. Au delà de 60° de latitude, la dispersion des modèles est assez grande, notamment dans l'hémisphère d'hiver. Notons que généralement les modèles de chimie-climat ne reproduisent pas correctement la faible teneur en méthane en octobre au pôle sud. La distribution du méthane est correctement modélisée dans les modèles et est en accord avec les observations HALOE, avec un biais plus prononcé dans les régions polaires. Le transport à grande échelle est bien représenté dans les modèles de chimie-climat, notons que les différences entre les modèles sont faibles.

Un diagnostic important pour évaluer le transport dans les régions tropicales est la propagation verticale du cycle saisonnier de la vapeur d'eau dans la basse stratosphère tropicale. En effet, les changements saisonniers de la température à la tropopause tropicale induisent une variation saisonnière de la vapeur d'eau entrant dans la basse stratosphère tropicale. La propagation verticale des anomalies du cycle saisonnier de la vapeur d'eau est appelée « *tape recorder* » [Mote et al., 1996]. Cette propagation donne une bonne estimation de la branche ascendante tropicale de la circulation de Brewer-Dobson.

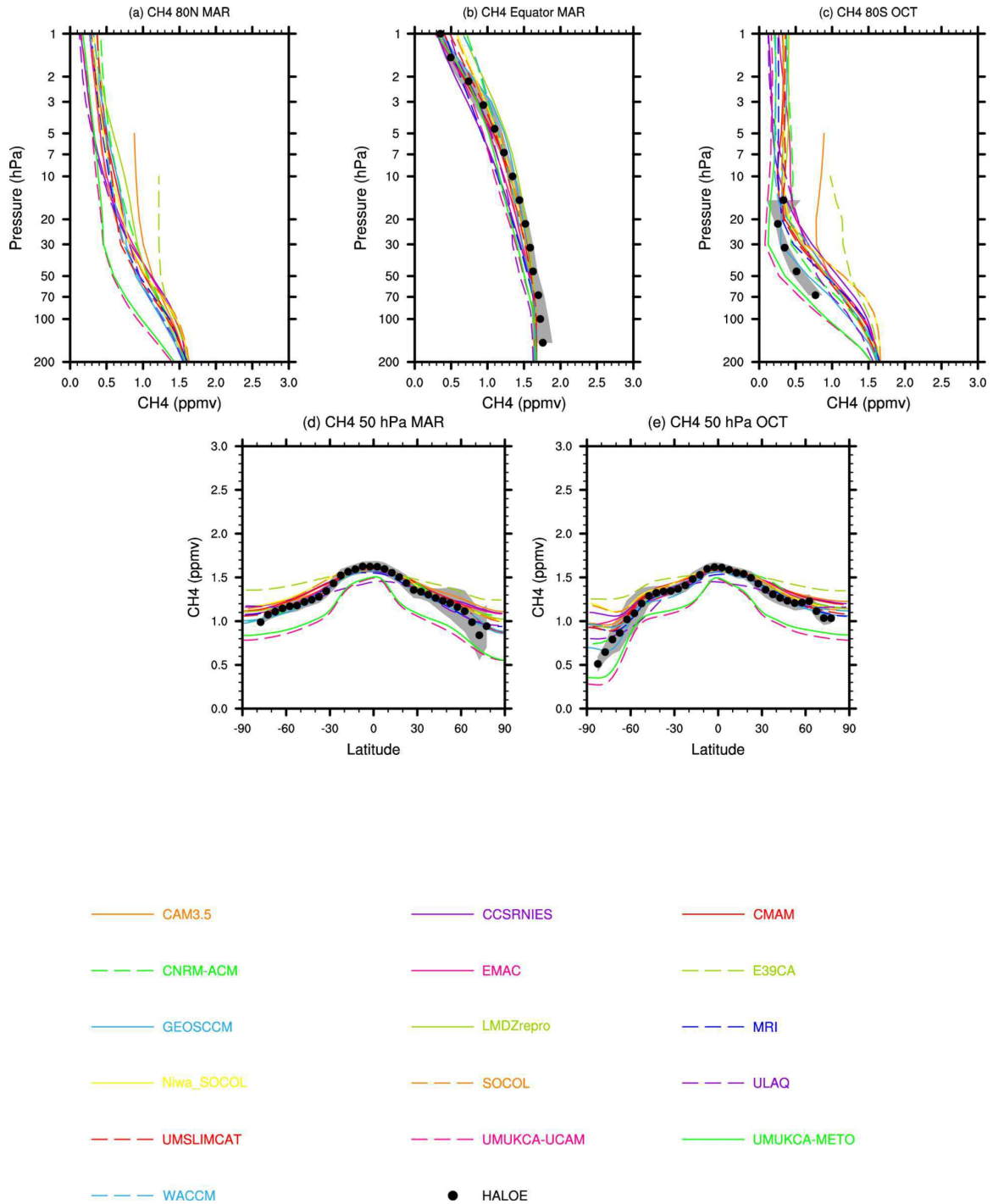


Fig. 13. — Climatologies en moyenne zonale du rapport de mélange du méthane (ppmv) issu des modèles de chimie-climat (courbes en couleur) et des observations HALOE (courbe noire). Profils verticaux (a) à 80° N en mars, (b) à 0° en mars, (c) à 80° S en octobre. Profils latitudinaux à 50 hPa (d) en mars et (e) en octobre. La zone grisée correspond à plus ou moins un écart type de la moyenne zonale climatologique des observations HALOE (communication du CCMVal).

Water Vapor anomaly time height sections (averaged from 10S to 10N)

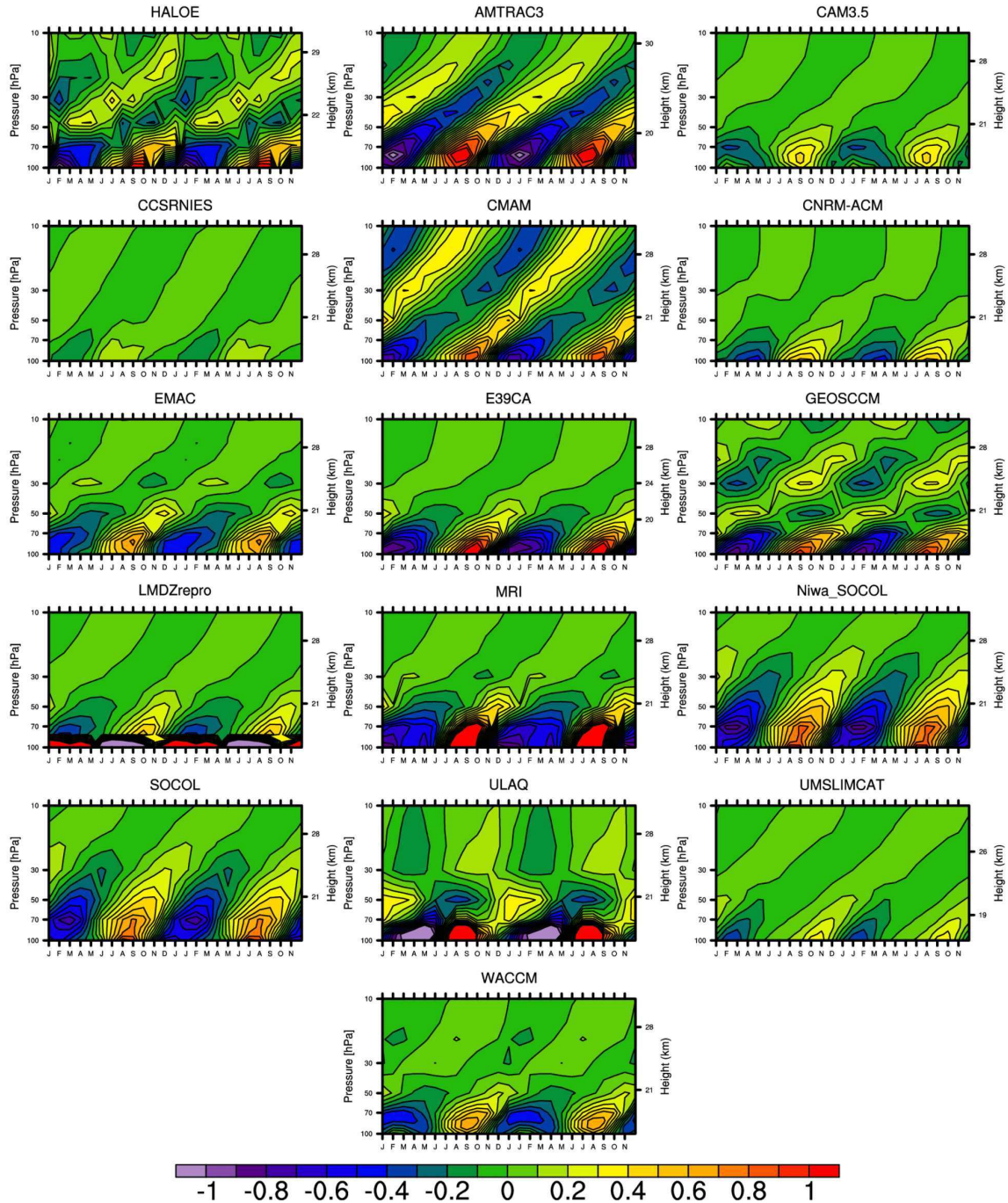


Fig. 14. — Coupes temps-pressure d'anomalies du rapport de mélange de la vapeur d'eau (ppmv) moyennées entre 10° S et 10° N pour les données HALOE et les simulations des modèles de chimie-climat. Deux cycles consécutifs sont représentés (communication du CCMVal).

Les Figures 14 présentent des coupes temps-pressure de la différence entre la moyenne mensuelle et la moyenne annuelle du rapport de mélange de la vapeur d'eau entre 10°S et 10°N pour les observations HALOE et les simulations des modèles de chimie-climat. Entre 100 et 70 hPa, les modèles de chimie-climat reproduisent les variations temporelles de l'anomalie tropicale de la vapeur d'eau, avec un minimum en hiver et un maximum en été. L'amplitude des variations est très faible pour UMSLIMCAT et CCSRNIES alors que les modèles AMTRAC, MRI et ULAQ surestiment l'amplitude du signal. Le modèle LMDz-REPROBUS présente un déphasage en opposition de phase en dessous de 80 hPa. La propagation verticale est assez bien représentée dans les différents modèles mais elle est généralement très atténuée à partir de 30 hPa.

Les Figures 15 présentent le cycle annuel de la vapeur d'eau et de la température à 100 hPa à l'équateur. La teneur en vapeur d'eau dans la basse stratosphère est fonction de la température à la tropopause tropicale donc les variations de la température dans la région de la tropopause tropicale expliquent les variations de la vapeur d'eau dans la basse stratosphère. Les modèles de chimie-climat représentent correctement l'amplitude et la phase du cycle saisonnier de la température tropicale à 100 hPa. Cependant, la dispersion de la valeur moyenne de la température à la tropopause tropicale varie entre 188 et 201 K. Le modèle CCSRNIES sous-estime les données ERA-40 d'environ 5 K alors que les modèles UMUKCA-METO et UMUKCA-UCAM surestiment la température de l'ordre de 6 K. Les Figures 15 montrent également que les modèles ont tendance à surestimer la teneur moyenne de la vapeur d'eau à la tropopause tropicale. La phase et l'amplitude du cycle saisonnier de la vapeur d'eau sont relativement bien représentées dans les modèles de chimie-climat. En général, l'amplitude du cycle annuel de la vapeur d'eau est plus faible dans les modèles par rapport aux observations HALOE, à l'exception des modèles ULAQ et MRI dont l'amplitude du cycle annuel est deux fois plus forte que les observations HALOE. Le modèle LMDz-REPROBUS est en opposition de phase par rapport aux observations et aux variations de sa température à la tropopause tropicale. Cette incohérence a déjà été remarquée sur les figures précédentes et indique un problème de paramétrisation de la vapeur d'eau à la tropopause tropicale. De manière générale, les modèles de chimie-climat sont capables de reproduire la relation température/ H_2O aux tropiques.

L'âge de l'air est défini comme étant le temps mis par une particule d'air pour aller de la basse troposphère jusqu'à une altitude donnée dans la stratosphère [Hall and Prather, 1993]. L'âge de l'air peut être déterminé à partir de mesures de traceurs dont la concentration augmente quasi linéairement avec le temps, comme SF_6 , CO_2 , ... Pour estimer l'âge de l'air dans les modèles, on choisit d'introduire un traceur idéalisé dont le rapport de mélange augmente linéairement avec le temps dans la troposphère tropicale. Il en résulte une relation linéaire entre le rapport de mélange du traceur à la tropopause tropicale et le temps. L'âge d'une parcelle d'air dans la stratosphère est défini comme le temps écoulé depuis son passage à la tropopause tropicale. Les Figures 16 présentent des profils latitudinaux moyens de l'âge de l'air pour trois niveaux d'altitudes. A 0,5 hPa, la majeure partie des modèles de chimie climat sous-estiment l'âge de l'air d'environ 2 ans. Le modèle ULAQ est en très bon accord avec les observations alors que les modèles MRI et MAECHAM4CHEM surestiment largement les observations. A 50 hPa, les modèles de chimie climat sont en bon accord avec les observations à l'exception du modèle

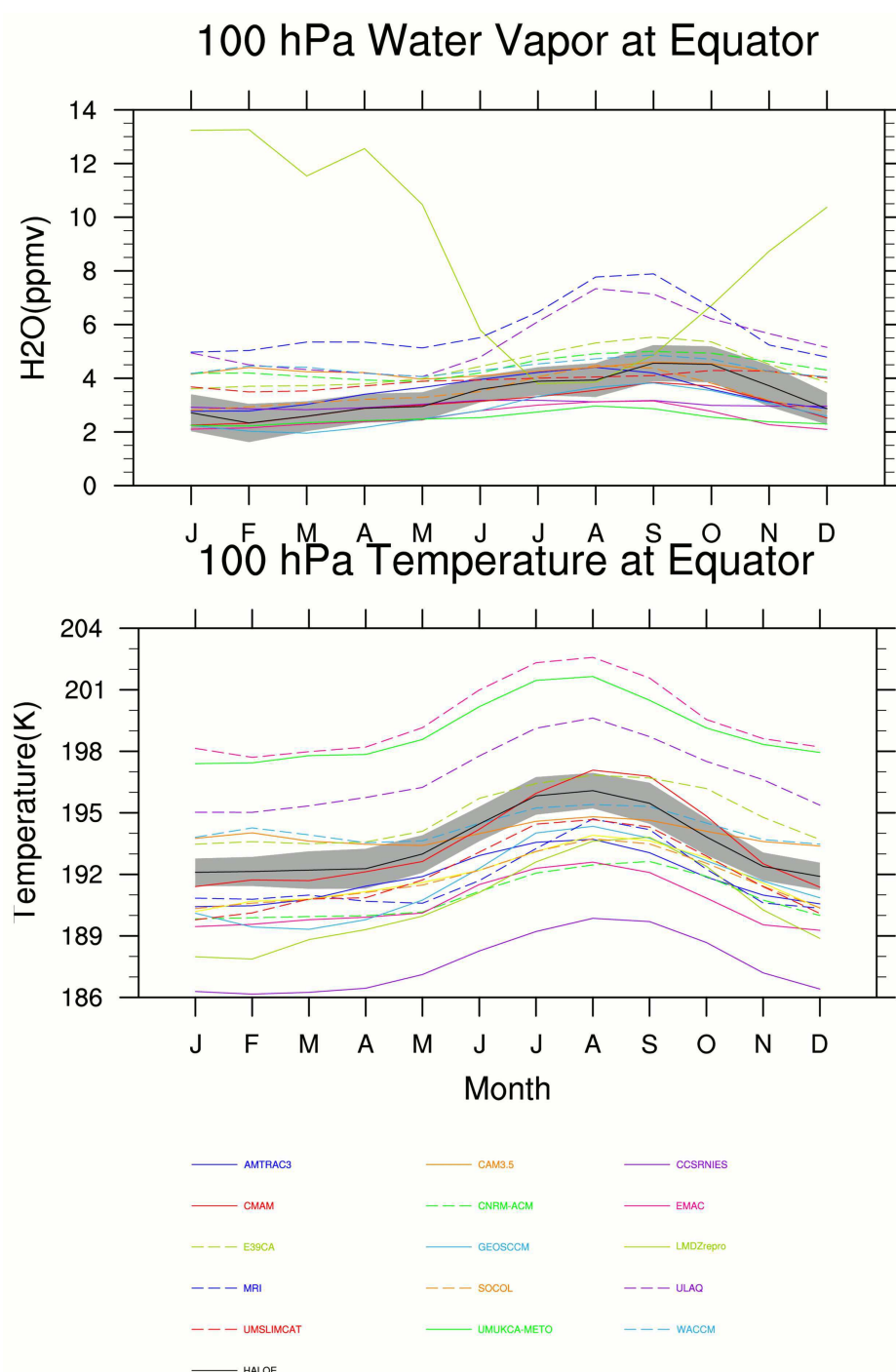


Fig. 15. – Cycle annuel moyen à 100hPa à l'équateur pour la vapeur d'eau en ppmv (en haut) et pour la température en K (en bas). Pour la vapeur d'eau les moyennes climatologiques sont comprises entre 1991 et 2002, les observations HALOE sont en noir et les modèles de chimie-climat en couleur. Pour la température les moyennes climatologiques sont comprises entre 1992 et 2001, les données ERA-40 sont en noir et les modèles de chimie-climat en couleur (communication du CCMVal).

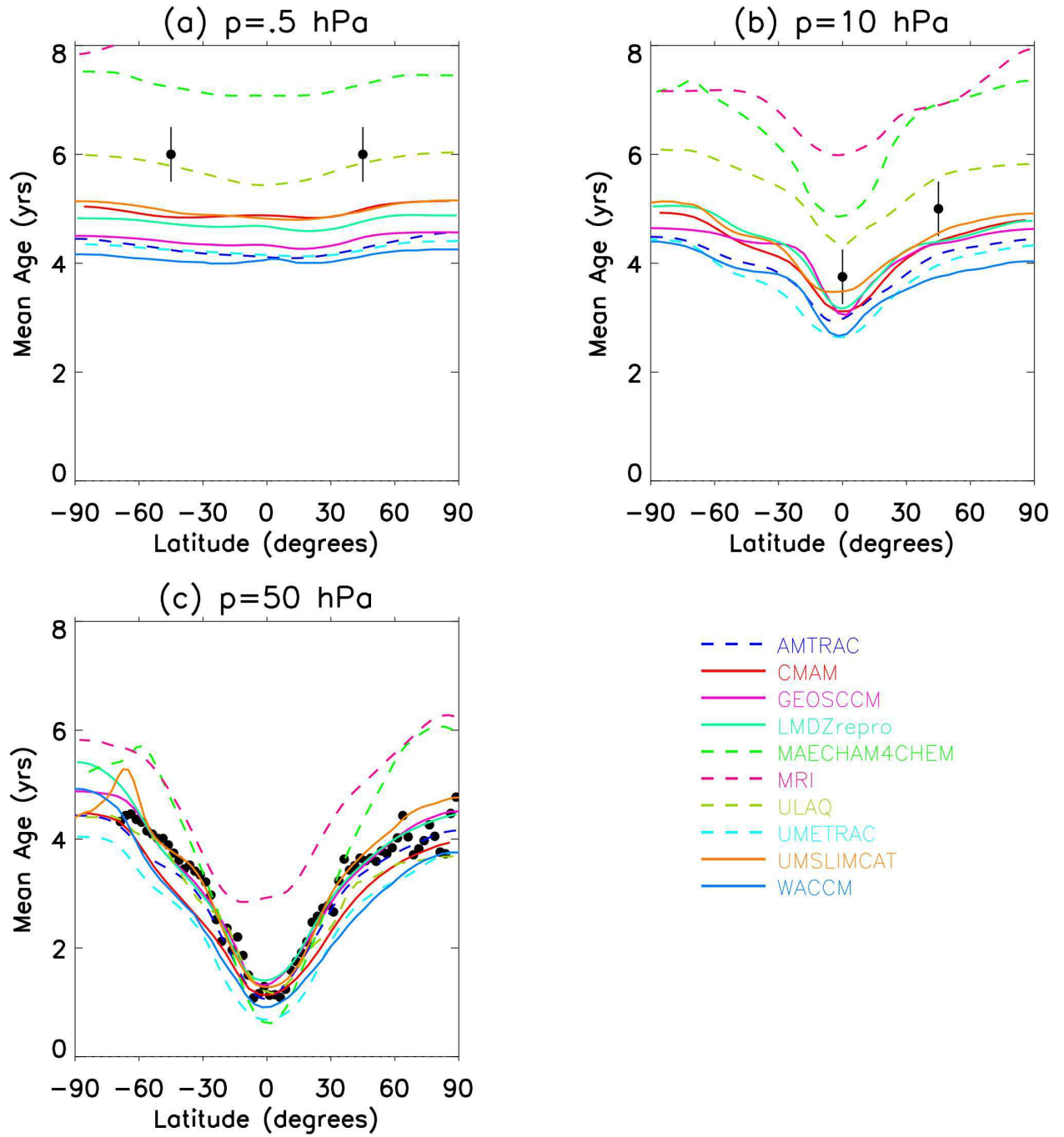


Fig. 16. – Profils latitudinaux moyens de l'âge de l'air issus des modèles de chimie-climat (courbes en couleur) et issus d'observations à longue durée de vie (i.e. SF_6 , CO_2 , ...) (rond noir) (a) à 0,5 hPa, (b) à 10 hPa et (c) à 50 hPa (communication du CCMVal).

MRI qui surestime de 1 à 2 ans les observations à toutes les latitudes et du modèle MAECHAM4CHEM aux pôles. L'âge de l'air calculé par les modèles de chimie-climat tend à être trop jeune aux hautes altitudes. Cette différence avec les observations semble montrer que la circulation est trop rapide dans la haute stratosphère.

Espèces réactives

Dans cette partie, parmi toutes les espèces accessibles par le CCM, nous avons choisi d'analyser les distributions de l'acide chlorhydrique (HCl) et de l'ozone.

L'acide chlorhydrique, HCl, est un des plus importants réservoirs de chlore dans la stratosphère, avec le nitrate de chlore, ClONO₂. Cette espèce joue un rôle clé dans les processus chimiques de destruction de l'ozone. Les Figures 17 présentent des moyennes climatologiques de profils verticaux à différentes latitudes et des variations latitudinales à 50 hPa de moyenne zonale mensuelle du rapport de mélange de l'acide chlorhydrique issu des modèles de chimie-climat et des observations HALOE. En dessous de 70 hPa, les modèles de chimie-climat montrent une variation assez faible, particulièrement aux tropiques. Au dessus de 70 hPa, nous notons une étendue entre les modèles de l'ordre de 1 ppbv. Les modèles AMTRAC et MRI sous-estiment la teneur en HCl, alors que les modèles CCSRNIES et SOCOL surestiment cette teneur en HCl. Les profils latitudinaux à 50 hPa montrent une dispersion faible des modèles aux tropiques, cette dispersion augmente vers les pôles. Les modèles AMTRAC et UМУKCA-METO représentent respectivement les bornes minimales et maximales de la dispersion des modèles.

Les Figures 18 présentent le cycle annuel moyen de la moyenne zonale de la colonne totale d'ozone pour les observations NIWA, TOMS (*Total Ozone Mapping Spectrometer*), et les simulations des modèles de chimie-climat pour la période 1980-1999. Les modèles reproduisent très bien la variation latitudinale. Nous remarquons des valeurs minimales aux tropiques de l'ordre de 250 DU et des valeurs plus élevées aux moyennes latitudes de l'ordre de 350 DU. Les variations temporelles sont également bien représentées dans les modèles et elles sont comparables aux observations. Aux moyennes latitudes, on observe un maximum de la colonne d'ozone pendant l'hiver et le printemps et un minimum de la colonne d'ozone en été et en automne. Le trou d'ozone est relativement bien représenté aux pôles dans les modèles de chimie-climat. Cependant, dans l'hémisphère sud, en général les modèles de chimie-climat simulent une valeur d'ozone plus faible par rapport aux observations et une persistance du trou d'ozone jusqu'en décembre. Dans l'hémisphère nord aux hautes latitudes, les modèles E39CA, GEOSCCM, ULAQ, CAM3.5 et UМУKCA-METO présentent des valeurs trop élevées d'ozone.

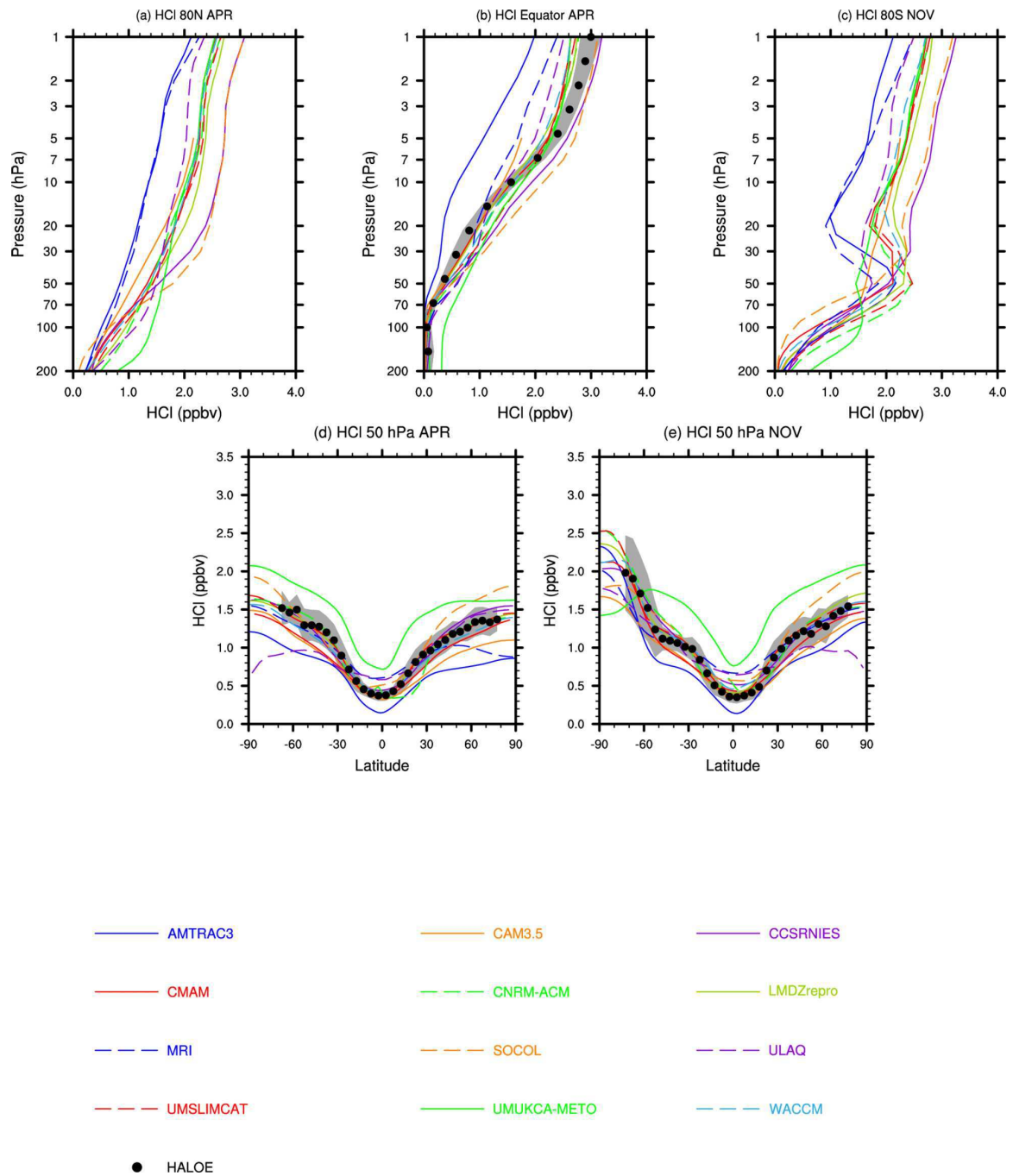


Fig. 17. — Climatologies en moyenne zonale du rapport de mélange de l'acide chlorhydrique (ppbv) issu des modèles (courbes en couleur) et des observations HALOE (courbe noire). Profils verticaux (a) à 80°N en mars, (b) à 0° en mars, (c) à 80°S en octobre. Profils latitudinaux à 50 hPa (d) en mars et (e) en octobre. La zone grisée correspond à plus ou moins un écart type de la moyenne zonale climatologique des observations HALOE (communication du CCMVal).

Total Column Ozone

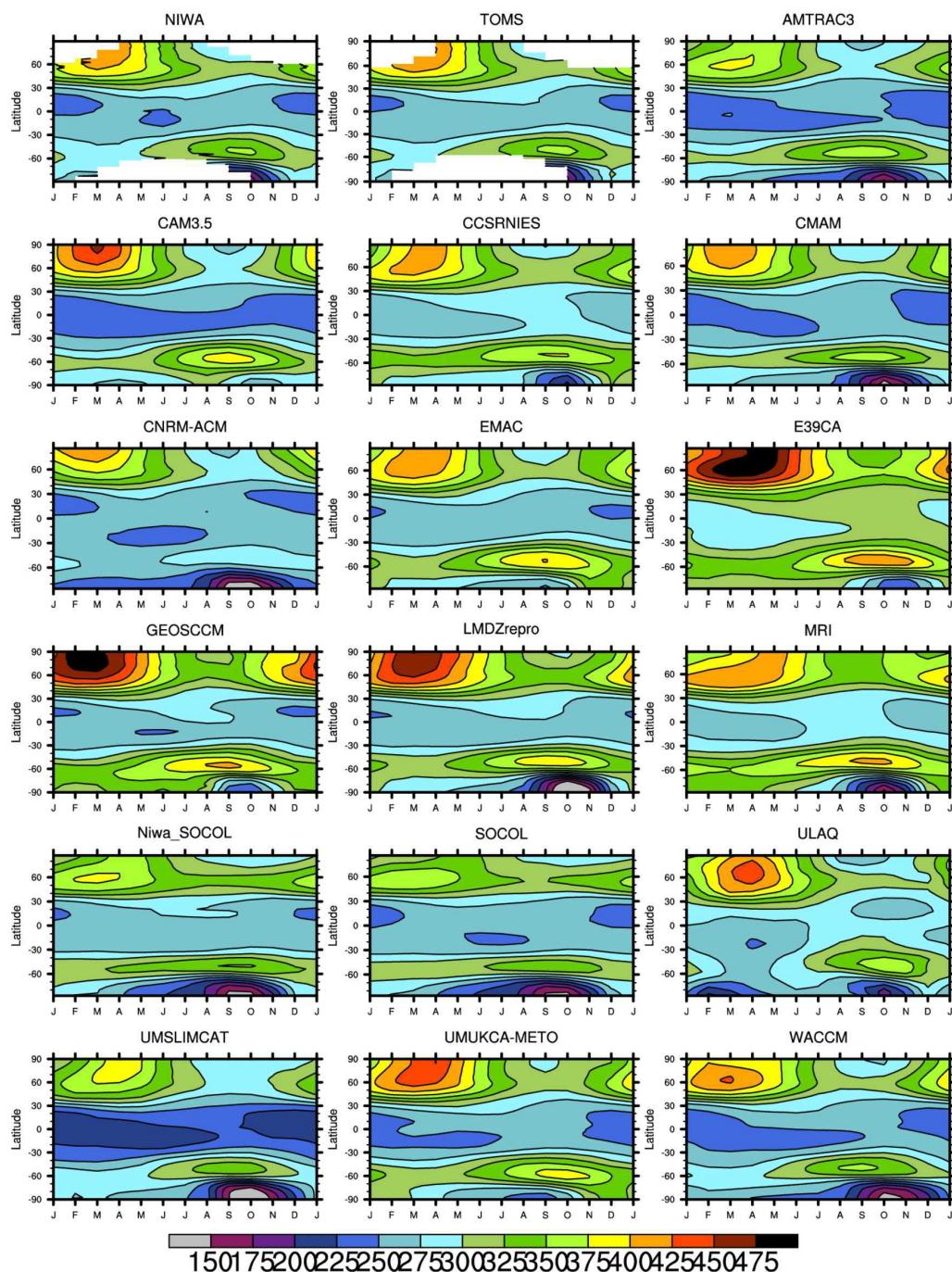


Fig. 18. – Cycles annuels moyens de la moyenne zonale de la colonne totale d’ozone (DU) pour les observations NIWA, TOMS (Total Ozone Mapping Spectrometer), et les simulations des modèles de chimie-climat pour la période 1980-1999 (communication du CCMVal).

2.2 Jeux d'observations

Différents types d'instruments destinés à la mesure de la composition de l'atmosphère ont été développés au cours du 20^{ème} siècle. L'exploration de l'atmosphère a débuté grâce aux mesures depuis le sol et aux mesures in situ. L'année géophysique internationale 1957-1958 a donné un nouvel essor à l'aéronomie avec le lancement du premier satellite artificiel, Spoutnik, par la Russie. Une variété de techniques de mesure de la composition atmosphérique existe actuellement, chacune avec ses avantages et ses inconvénients. Les molécules détectables et la gamme d'altitude accessible varient en fonction des caractéristiques techniques de l'instrument. Les différents instruments offrent ainsi une vue limitée mais assez complémentaire de l'atmosphère terrestre. Dans cette thèse nous distinguons trois types de jeux de données : les observations par télédétection du sol, les observations in situ et les observations satellitales. Ces jeux de données sont indispensables à l'évaluation des modèles de chimie-climat.

2.2.1 Observations par télédétection du sol

Créé en 1991, le NDACC (*Network for Detection of Atmospheric Composition Change*), anciennement NDSC (*Network for Detection of Stratospheric Change*), est un réseau international de surveillance de la stratosphère et de la haute troposphère. Il a pour objectif le suivi et la détection des changements de la composition chimique et de la température d'origines naturels ou anthropiques ainsi que l'étude des interactions entre la chimie et le climat. Un autre objectif du NDACC est de valider à partir de mesures sol les mesures effectuées par satellite. Le NDACC regroupe un ensemble de mesures issues de plus de soixante-dix sites de mesures et d'une centaine de campagnes de mesures. Les stations NDACC mesurent de façon régulière la composition de l'atmosphère et en particulier, les concentrations des gaz et aérosols contribuant à la destruction de l'ozone stratosphérique et/ou au réchauffement global. La diversité des instruments offre des mesures pour une très large gamme de molécules. La facilité d'accès et de maintenance des instruments permet de maintenir une stabilité de la qualité des mesures dans le temps bien que parfois les changements d'instrumentations aboutissent à une discontinuité temporelle des mesures. Bien que les stations soient réparties de l'Arctique à l'Antarctique, le réseau offre une couverture spatiale inégale entre l'hémisphère nord et l'hémisphère sud. Le large choix d'instruments (SAOZ, FT-IR, ballon-sonde, ...) donne accès à la colonne totale ou à la distribution verticale des gaz atmosphériques tel que l'O₃, NO₂, N₂O, CH₄, H₂O, HCl, HNO₃ et ClONO₂.

Dans le chapitre 4, nous évaluons les modèles de chimie-climat par comparaison aux mesures du réseau NDACC. Les espèces chimiques utilisées pour cette validation sont listées dans la Table 3. Ce tableau donne également accès à la liste des stations du NDACC des espèces chimiques utilisées ainsi que leur instrument et leur période de mesures. La Figure 19 présente la position géographique des stations du NDACC utilisées.

Station	Coordonnées	Instrument	Espèce	Période
Nyalesund	79° N-12° E	SAOZ	O ₃ , NO ₂	1991-2004
Scoresbysund	70° N-22° W	SAOZ	O ₃	1994-2004
		SAOZ	NO ₂	1992-2004
Kiruna	68° N-20° E	SAOZ	NO ₂	1992-2004
		FT-IR	O ₃ , HCl, HNO ₃	1996-2004
		FT-IR	CH ₄ , N ₂ O, ClONO ₂	1996-2004
Sodankyla	67° N-27° E	SAOZ	O ₃ , NO ₂	1990-2004
Zhigansk	67° N-123° E	SAOZ	O ₃	1994-2004
		SAOZ	NO ₂	1992-2004
Harestua	60° N-11° E	SAOZ	NO ₂	1995-2004
		FT-IR	O ₃ , HCl, HNO ₃	1995-2004
		FT-IR	CH ₄ , N ₂ O, ClONO ₂	1995-2004
Zugspitz	47° N-11° E	FT-IR	O ₃	1996-2004
Jungfrajoch	47° N-8° E	SAOZ	O ₃	1991-2004
		SAOZ	NO ₂	1990-2004
		FT-IR	HCl, HNO ₃ , ClONO ₂	1990-2004
Observatoire de Haute Provence	44° N-8° E	SAOZ	O ₃	1992-2004
		SAOZ	NO ₂	1993-2004
Moshiri	44° N-142° E	FT-IR	O ₃ , HNO ₃ , ClONO ₂	1996-2001
		FT-IR	HCl	1996-2004
		SAOZ	NO ₂	1991-2004
Mauna Loa	20° N-156° W	FT-IR	O ₃ , HCl, HNO ₃ , N ₂ O	1992-2001
		FT-IR	CH ₄	1995-2001
		SAOZ	NO ₂	1996-2004
Tarawa	1° N-173° E	SAOZ	O ₃	1992-1999
		SAOZ	NO ₂	1993-1999
La Réunion	22° S-56° E	SAOZ	O ₃ , NO ₂	1994-2004
Bauru	22° S-49° W	SAOZ	O ₃ , NO ₂	1996-2004
Wollongong	34° S-151° E	FT-IR	O ₃ , HCl, HNO ₃ , N ₂ O	1995-2004
		FT-IR	CH ₄	2003-2004
Lauder	45° S-170° E	FT-IR	O ₃	1994-2004
		FT-IR	HCl, HNO ₃ , ClONO ₂	1991-2004
		FT-IR	CH ₄ , N ₂ O	2001-2004
		SAOZ	NO ₂	1981-2004
Kerguelen	49° S-70° E	SAOZ	O ₃	1996-2004
Dumont d'Urville	67° S-140° E	SAOZ	O ₃ , NO ₂	1988-2004
Arrival Heights	78° S-167° E	SAOZ	NO ₂	1991-2004

Tab. 3. — Liste des stations du NDACC avec les instruments utilisés, les espèces mesurées et leur période de mesures

Les mesures utilisées dans le chapitre 4 sont issues de deux types d'instruments : le SAOZ et le FT-IR. Le SAOZ (Système d'Analyse par Observation Zénithale) est un spectromètre UV-visible (300-650 nm) développé au Service d'Aéronomie à la fin des années 80 pour la surveillance de l'ozone [Pommereau and Goutail, 1988]. Cet instrument mesure l'absorption solaire par occultation au lever et au coucher du soleil. Les observations SAOZ permettent d'accéder aux colonnes (*i.e.* concentrations intégrées verticalement) d'ozone et de dioxyde d'azote. L'instrument est complètement automatisé, il fournit entre 1 à 6 mesures par semaine. L'erreur associée à la mesure de l'instrument SAOZ est de l'ordre de 5,9% [Hendrick et al., 2011]. Les performances du SAOZ ont été évaluées durant de nombreuses intercomparaisons d'instruments [Hofmann et al., 1995; Roscoe et al., 1999; Hendrick et al., 2011]. Les spectres d'absorption fournis par le spectromètre à transformée de Fourier (FT-IR) [Zander et al., 2008] permettent d'extraire les colonnes d'un certain nombre de composants atmosphériques gazeux, tels que : O_3 , HNO_3 , HCl , CO , N_2O , CH_4 , HCN , C_2H_6 et $ClONO_2$. L'erreur associée à la mesure de l'instrument FT-IR varie entre 1% pour le CH_4 à 29% pour le $ClONO_2$ [Kohlhepp et al., 2011]. De nombreuses intercomparaisons et comparaisons avec des observations satellitales ont été effectuées pour valider les mesures FT-IR [Lambert et al., 2003; Griffith et al., 2003; Dils et al., 2006; Griesfeller et al., 2006; Vigouroux et al., 2008].

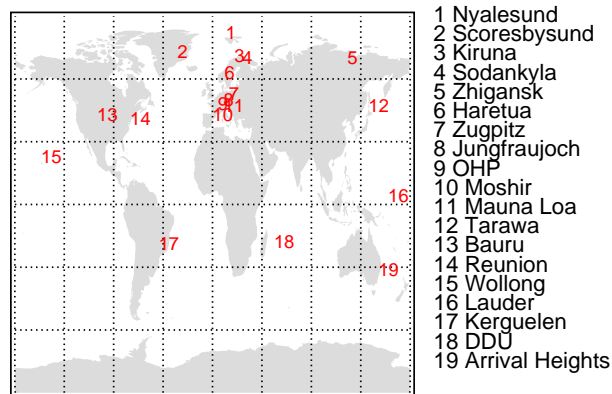


Fig. 19. — Carte des stations météorologiques du réseau NDACC

2.2.2 Observations in situ

Depuis 1980, la NOAA (*National Oceanic & Atmospheric Administration*) effectue à Boulder (Colorado, Etats-Unis) plusieurs lâchés de ballon-sondes par mois mesurant des profils de vapeur d'eau dans la stratosphère. Les sondes sont embarquées sur des ballons pour sonder verticalement l'atmosphère de la surface jusqu'à 35 km. Ces sondages permettent d'obtenir des profils verticaux de la vapeur d'eau et d'établir une longue et assez régulière base de données pour la vapeur d'eau [Oltmans and Hofmann, 1995; Oltmans et al., 2000]. Les mesures de vapeur d'eau sont obtenues à partir d'un hygromètre à

condensation [Oltmans, 1985; Vömel *et al.*, 1995]; cet instrument mesure la température du point de rosée. Cette température est mesurée avec une précision de l'ordre de 0,5 K, soit environ une erreur de 10% du rapport de mélange de la vapeur d'eau [Scherer *et al.*, 2008]. Ces observations sondes sont utilisées dans le chapitre 5 pour l'évaluation des modèles de chimie-climat.

2.2.3 Observations satellitales

Les observations satellitales se sont multipliées au cours des 3 dernières décennies. Les mesures satellitales permettent un échantillonnage régulier de l'atmosphère avec une gamme de latitude et de longitude déterminée par le type d'orbite. Ces mesures offrent généralement une couverture globale de la Terre en quelques jours. Elles fournissent également des mesures de la haute stratosphère et de la mésosphère peu ou pas accessibles depuis le sol. La sensibilité des mesures dans les basses couches de l'atmosphère est par contre limitée. Les instruments satellitaires souffrent d'une dégradation instrumentale inévitable dans un environnement spatial agressif qui peut affecter la qualité des mesures. Le temps de vie des instruments est parfois seulement de quelques années. Dans le chapitre 5 de cette thèse, les mesures de l'instrument HALOE sont analysées pour évaluer les modèles de chimie-climat.

L'instrument HALOE (*Halogen Occultation Experiment*) à bord du satellites UARS (*Upper Atmosphere Research Satellite*) a fourni des profils de rapport de mélange des espèces traces de la stratosphère de septembre 1991 à septembre 2005. Sa mission scientifique est d'observer la composition chimique de la moyenne et haute atmosphère terrestre. HALOE est un radiomètre infra-rouge à large bande. Il mesure l'atténuation, due à l'atmosphère, de l'irradiance solaire par occultation à chaque lever et coucher du soleil. Après traitement, HALOE fournit les profils verticaux de O₃, H₂O, CH₄, HF, HCl, NO, NO₂, l'extinction des aérosols (pour quatre longueurs d'onde dans l'infra-rouge) et la température. Nous analysons le produit de la version 19 non grillée des observations [Russell III *et al.*, 1993]. Cette version non grillée des observations est issue des trajectoires mensuelles pour 322 niveaux de pression compris entre 1000 hPa et 1.10^{-6} hPa. Cette version des observations permet d'avoir une évolution temporelle entre septembre 1991 et septembre 2005. Les erreurs associées à la mesure des différentes espèces sont comprises entre 9 et 27% dans la basse stratosphère et 9 et 30% dans la haute stratosphère.

Chapitre 3

Méthodes d'analyses

Sommaire

3.1	Désaisonnalisation	64
3.2	Régression linéaire multiple (MLR)	66
3.2.1	Cadre mathématique	67
3.2.2	Validation des hypothèses du modèle de MLR	68
3.2.2.1	Hypothèse 1	68
3.2.2.2	Hypothèse 2	70
3.2.2.3	Hypothèse 3	70
3.2.2.4	Hypothèse 4	70
3.2.2.5	Hypothèse 5	72
3.2.3	Transformation de Cochrane-Orcutt	73
3.2.4	Bootstrap	74
3.2.5	Coefficient de détermination	75
3.2.6	Test de significativité du modèle de MLR	76
3.2.7	Test de significativité des coefficients de régression	76
3.3	Analyse spectrale	77
3.3.1	Périodogramme de Lomb et Scargle	77
3.3.2	Tests de sensibilité	77
3.3.2.1	Effet du pas de temps irrégulier	77
3.3.2.2	Effet de la longueur de la série	78
3.3.2.3	Effet du cycle saisonnier	79
3.3.2.4	Effet de la tendance	79
3.3.2.5	Effet du bruit	81
3.4	Détection de ruptures	81

Les méthodes mathématiques et statistiques utilisées tout au long de cette thèse sont décrites dans ce chapitre. Dans cette thèse nous utilisons essentiellement et régulièrement quatre méthodes : la désaisonnalisation (section 3.1), la régression linéaire multiple (section 3.2), les périodogramme de Lomb et Scargle (section 3.3) et la détection de ruptures dans la moyenne d'une série (section 3.4). Dans ce chapitre, toutes les méthodes ont été testées et évaluées pour nous permettre de réaliser des analyses robustes tout en connaissant les faiblesses de chaque méthode développée.

3.1 Désaisonnalisation

La thèse est largement focalisée sur les variations inter-annuelles de la composition chimique de la stratosphère. Il faut donc essayer d'éliminer les autres composantes fortes du signal. Le cycle annuel saisonnier est une variabilité bien connue dans les séries temporelles géophysiques. La désaisonnalisation permet d'éliminer d'une série temporelle brute la variabilité périodique provenant des variations saisonnières. Après désaisonnalisation, la série tend à contenir typiquement les variations inter-annuelles et des variations haute fréquence (*i.e.* des composantes du signal dont les fréquences sont bien plus élevées que celles des composantes saisonnières). Nous avons considéré 2 approches dans l'estimation de la composante saisonnière à retirer de la série brute, soit une décomposition en séries d'harmoniques (E1) [Stolarski et al., 1991; Brunner et al., 2006; CCMVal, 2010] soit simplement la moyenne de chaque mois de l'année à la série brute (E2) [Ziemke et al., 1997; Staehelin et al., 2001; Dhomse et al., 2006].

$$SC_h(t) = \alpha_1 + \sum_{k=1}^3 [\alpha_{2k} \cos(2\pi kt/12) + \alpha_{2k+1} \sin(2\pi kt/12)] \quad (E1)$$

$$SC_m(t) = \sum_{k=1}^{12} \alpha_k \delta_{kt} \quad (E2)$$

Dans l'équation E1, SC_h est une estimation du cycle saisonnier calculé à partir d'une régression linéaire de la série brute. Les coefficients α_n sont estimés à partir de la méthode des moindres carrés. La variable t est le temps en mois et il varie de 1 à N , N étant la longueur de la série brute. Suivant cette équation, le cycle saisonnier est décomposé en 3 séries d'harmoniques de 4, 6, et 12 mois [Hollandsworth et al., 1995].

Dans l'équation E2, SC_m est l'estimation du cycle saisonnier à partir des moyennes mensuelles. t est le temps en mois et il varie de 1 à N , N étant la longueur de série brute. α_k est la moyenne de chaque mois de l'année sur la période N et k varie de 1 à 12. δ_{kt} est égale à 1 quand t correspond au mois k de l'année en cours et δ_{kt} est égale à 0 dans les autres cas [Harris et al., 1998]. Pour désaisonnaliser $Y(t)$, il suffit alors de soustraire $SC_h(t)$ ou $SC_m(t)$ à $Y(t)$.

La Figure 20a montre la série brute de la colonne de CH_4 (courbe noire) pour les observations NDACC à Lauder sur une courte période de 2001 à 2004. La Figure 21a montre la série brute de la colonne de NO_2 au lever du soleil (*sunrise* : sr) (courbe noire) pour les observations NDACC à Lauder sur une longue période de 1982 à 2004. Sur la Figure 20a et 21a, le cycle saisonnier calculé par les

deux méthodes décrites ci-dessus, somme d'harmoniques et moyennes mensuelles, sont respectivement représentés en rouge et bleu. De visu, les deux méthodes semblent proches et elles sont en accord avec la série brute. Les Figures 20b et 21b montrent la série désaisonnalisée par soustraction de la somme d'harmoniques en rouge et par soustraction des moyennes mensuelles en bleu. Les anomalies (par rapport au cycle saisonnier) de CH_4 et de NO_2 obtenues par les 2 méthodes sont très proches. Nous savons que la variance de la composition chimique est dominée par le cycle saisonnier. Plus une méthode est efficace à enlever la composante saisonnière, plus les distributions du signal brut et du signal désaisonnalisée devraient être différentes. Pour identifier la meilleure méthode dans notre cas, un test du χ^2 d'adéquation est appliqué. Dans ce test, l'hypothèse nulle H_0 est : la série désaisonnalisée construite par soustraction de la somme d'harmoniques ou des moyennes mensuelles a la même distribution que la série brute ; et l'hypothèse alternative H_1 est : les deux séries n'ont pas la même distribution. La statistique du test s'appuie sur le calcul du D_{cal}^2 (E3) qui suit la loi du χ^2 .

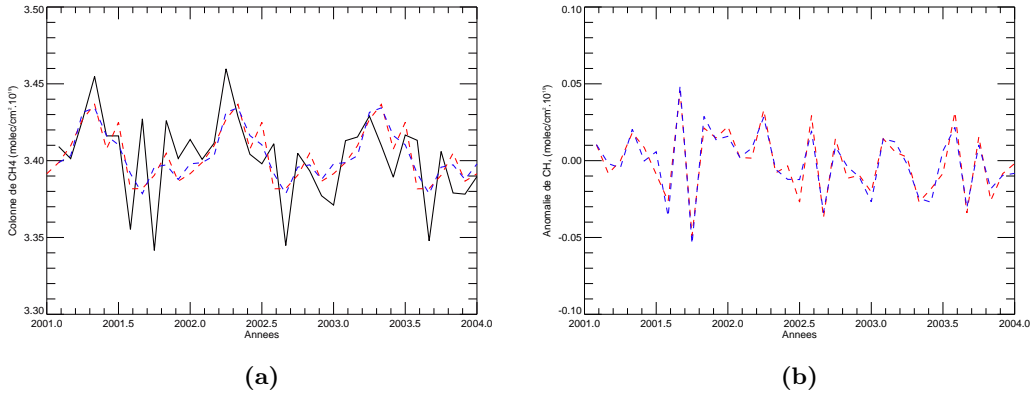


Fig. 20. – (a) Evolution temporelle de la colonne de CH_4 pour la série d'observations NDACC à Lauder, en noire la série brute, en bleue tireté le cycle saisonnier construit avec la somme d'harmoniques et en rouge tireté le cycle saisonnier construit avec les moyennes mensuelles. (b) Evolution temporelle de la série désaisonnalisée de la colonne de CH_4 , en bleue tireté construite avec la somme d'harmoniques et en rouge tireté construite avec les moyennes mensuelles.

$$D_{cal}^2 = \sum_{j=1}^N \frac{(O_j - E_j)^2}{E_j} \quad (\text{E3})$$

O est la série dite observée, dans notre cas, la composante saisonnière construite avec la somme d'harmoniques ou avec les moyennes mensuelles. E est la série attendue, dans notre cas la série brute. N est la longueur de la série brute et j est le temps en mois. H_0 est rejetée si $D_{cal}^2 > \chi_{\alpha, N-1}^2$. χ^2 est donné dans la table du χ^2 avec α le risque de première espèce (c'est à dire la probabilité de rejeter H_0 alors que c'est vrai) et $N-1$ le nombre de degrés de liberté. La méthode de désaisonnalisation basée sur des moyennes mensuelles rejette généralement plus souvent l'hypothèse H_0 avec un seuil de confiance de 0,0001 (soit 99,90% de seuil de confiance) que la méthode par somme d'harmoniques. Pour cette raison, tout au long de cette thèse, la désaisonnalisation des séries temporelles est réalisée en utilisant

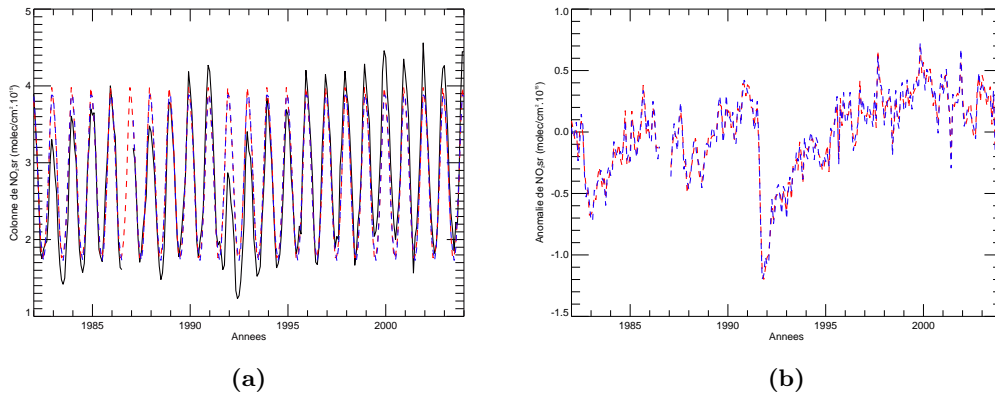


Fig. 21. — (a) Evolution temporelle de la colonne de NO_2 sr pour la série d'observations NDACC à Lauder, en noire la série brute, en bleue tiretée le cycle saisonnier construit avec la somme d'harmoniques et en rouge tiretée le cycle saisonnier construit par les moyennes mensuelles. (b) Evolution temporelle de la série désaisonnalisée de la colonne de NO_2 sr, en bleue tiretée construite avec la somme d'harmoniques et en rouge tiretée construite avec les moyennes mensuelles.

la méthode des moyennes mensuelles d'après l'équation E2.

3.2 Régression linéaire multiple (MLR)

La régression linéaire multiple (MLR) est une analyse statistique qui estime les variations d'une variable endogène ou expliquée associée aux variations de plusieurs variables exogènes ou explicatives. La régression linéaire multiple peut être utilisée dans plusieurs cas :

- trouver la meilleure équation linéaire de prévision et en évaluer la précision et la significativité.
- estimer la contribution relative de plusieurs variables explicatives sur la variation d'une variable expliquée et déceler l'effet complémentaire ou antagoniste entre diverses variables explicatives.
- juger l'importance relative de plusieurs variables explicatives sur la variable expliquée avec une théorie causale d'un lien sous-jacent.

Dans cette thèse, nous utilisons la méthode de MLR pour estimer la contribution de forçages externes dans la variabilité de la composition chimique stratosphérique. Des interactions possibles entre la variable expliquée et les variables explicatives sont déjà identifiées, donc nous essayerons de quantifier des liens entre ces variables à partir des résultats de régression. La méthode de MLR utilisée est similaire à celle décrite dans le chapitre 8 du rapport *CCMVal* [2010]. Les variables explicatives sont les forçages externes décrits dans la section 2.1.2.2 : solaire, oscillation quasi-biennale, oscillation sud-El niño, aérosols volcaniques et la tendance. La Figure 22 montre les contributions naturelles ou anthropiques des forçages externes à la variabilité de la colonne d'ozone moyennée entre 60° N et 60° S. La forte diminution à long terme de l'ozone est expliquée par l'augmentation des halogénés représentés par l'indicateur EESC (*equivalent effective stratospheric chlorine*). La variabilité naturelle

n'est pas du tout négligeable. Le cycle annuel domine la variabilité naturelle avec une amplitude d'environ 12 DU, suivi par le cycle solaire avec environ 6 DU entre le maximum et le minimum du cycle solaire. La QBO représente environ 4 DU entre la phase d'ouest et celle d'est. La composante ENSO est faible ; sa contribution à la variation de la moyenne globale de la colonne d'ozone est moins de 1 DU. La contribution volcanique est très faible hormis lors des éruptions volcaniques majeures où sa contribution peut atteindre environ 6 DU. Les variations des résiduels sont comprises entre ± 5 DU. Ces résidus s'expliquent par une incertitude sur les données, par la non-linéarité du système et par la variabilité interne (qui est propre au système et qui n'est générée pas par des forçages externes). La variabilité interne et la variabilité externe mais de nature non-linéaire ne sont pas prises en compte dans le modèle de MLR.

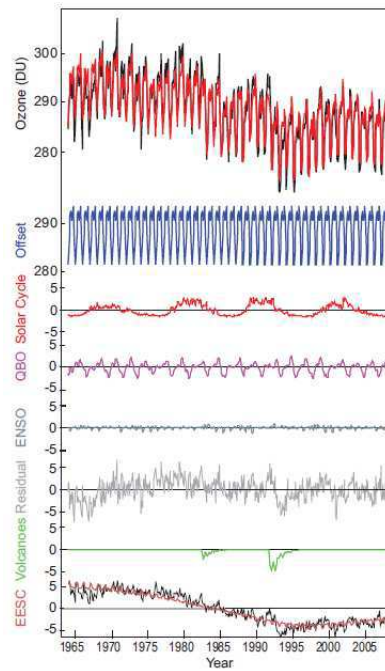


Fig. 22. — Evolution temporelle (entre 1964 et 2010) de la variation de la colonne d'ozone entre 60° N- 60° S à partir d'un ensemble d'observations [Fioletov et al., 2002], des variations attribuées à des variables explicatives et estimées par un modèle de MLR et les résidus. De haut en bas : la colonne d'ozone en noire et l'ajustement par régression linéaire multiple en rouge avec pour variables explicatives le cycle saisonnier, le cycle solaire, la QBO, l'ENSO et les EESC ; la composante attribuée au cycle annuel en bleu, celle de la variabilité solaire, principalement le cycle solaire à 11 ans, en rouge ; la composante QBO en violet ; celle de l'ENSO en bleu clair ; les résidus en gris ; la composante des aérosols stratosphériques en vert et celle des EESC en rouge (chapitre 8 du rapport CCMVal [2010]).

3.2.1 Cadre mathématique

La MLR permet d'expliquer la variation d'une variable dépendante par l'action d'une ou de plusieurs variables explicatives. En supposant une relation linéaire entre la variable expliquée et chaque variable explicative, la méthode de régression linéaire multiple décrit la variable expliquée comme la

somme des variables explicatives, moyennant des facteurs, d'après l'équation suivante :

$$Y(t) = \alpha_0 + \alpha_1 X_1(t) + \alpha_2 X_2(t) + \dots + \alpha_n X_n(t) + \epsilon(t) \quad (E4)$$

$$Y(t) = Y_{fit}(t) + \epsilon(t) \quad (E5)$$

$Y(t)$ est la variable expliquée, t est le temps en mois allant de 1 à N , $X_n(t)$ sont les variables explicatives, n le nombre de variables explicatives et $\epsilon(t)$ le terme résiduel du modèle de MLR. Les paramètres $\alpha_1, \alpha_2, \dots, \alpha_n$ sont les coefficients de régression. Ils sont calculés par la méthode des moindres carrés qui est l'estimateur sans biais le plus utilisé pour le calcul des α_n dans un modèle de MLR. Le principe des moindres carrés consiste à rechercher les valeurs des paramètres qui minimisent la somme des carrés des résidus. Les principales hypothèses de ce modèle de MLR sont énoncées ci-dessous :

- Hypothèse 1 : Le nombre de variables explicatives est connu et ces variables sont indépendantes.
- Hypothèse 2 : La longueur de la série notée N est supérieure au nombre de variables explicatives noté n .
- Hypothèse 3 : Les résidus du modèle suivent une loi normale de moyenne nulle et de variance constante.
- Hypothèse 4 : Les résidus ne sont pas corrélés entre eux, $cov(\epsilon_j, \epsilon_i) = 0$ pour tout j et i .
- Hypothèse 5 : Les résidus et les variables explicatives ne sont pas corrélées entre eux, $cov(X_j, \epsilon_i) = 0$ pour tout j et i .

3.2.2 Validation des hypothèses du modèle de MLR

Pour que la méthode utilisée soit la plus robuste possible, les hypothèses énoncées ci-dessous sont testées. Pour valider les hypothèses 1 et 5, nous avons utilisés les variables explicatives issues d'observations décrites dans la section 2.1.2.2. Pour valider les hypothèses 2, 3 et 4, nous avons utilisées les séries temporelles de NO_2 et de CH_4 issues des observations du NDACC décrites dans la section 2.2.1 pour une longue (1982-2004) et une courte (1992-2004) période.

3.2.2.1 Hypothèse 1

Les interactions entre les variables explicatives et la variable expliquée sont connues et les variables explicatives sont les forçages externes des CCM. Les Table 4 et 5 montrent respectivement les coefficients de corrélation de Pearson entre les variables explicatives pour une période courte (2001-2004) et pour une période longue (1982-2004). La significativité des coefficients de corrélation de Pearson a été testée à partir d'un test de Students. L'hypothèse nulle H_0 est : le coefficient de corrélation de Pearson est égale à zéro ; et l'hypothèse alternative H_1 est : le coefficient de corrélation de Pearson est différent de zéro. La statistique du test s'appuie sur le calcul de T_{cal} (E6) qui suit la loi de Students.

Variables explicatives	EESC/Cly/temps	Aérosol	Solaire	QBO	QBO"	ENSO
EESC/Cly/temps	1	0,07	-0,78	0,33	-0,20	0,29
Aérosol	0,07	1	-0,14	-0,48	-0,02	0,08
Solaire	-0,78	-0,14	1	0,03	0,23	-0,19
QBO	0,33	-0,48	0,03	1	-0,23	0,06
QBO"	-0,20	-0,02	0,23	-0,23	1	-0,47
ENSO	0,29	0,08	-0,19	0,06	-0,47	1

Tab. 4. – Coefficients de corrélation de Pearson entre les variables explicatives pour une petite période de 2001 à 2004, en rouge les coefficients sont significatifs pour un seuil à 99%, en noir les coefficients ne sont pas significatifs.

Variables explicatives	EESC/Cly/temps	Aérosol	Solaire	QBO	QBO"	ENSO
EESC/Cly/temps	1	-0,16	-0,07	0,02	-0,04	0,28
Aérosol	-0,16	1	0,02	-0,003	0,06	0,17
Solaire	0,07	0,02	1	-0,05	-0,03	-0,28
QBO	0,02	-0,003	-0,05	1	-0,06	0,004
QBO"	-0,04	0,06	-0,03	-0,06	1	-0,12
ENSO	-0,28	0,17	-0,28	0,004	-0,12	1

Tab. 5. – Coefficients de corrélation de Pearson entre les variables explicatives pour une grande période 1982 à 2004, en rouge les coefficients sont significatifs pour un seuil à 99%, en noir les coefficients ne sont pas significatifs.

$$T_{cal} = \frac{\rho_{X_j X_i} \sqrt{N-2}}{\sqrt{1 - \rho_{X_j X_i}^2}} \quad (E6)$$

$\rho_{X_j X_i}$ est le coefficient de corrélation de Pearson, X sont les variables explicatives et N est la longueur de la série temporelle des variables explicatives. H0 est rejeté si $T_{cal} > T_{\alpha, N-2}$. T est donné dans la table de Students avec α le risque de première espèce et N-2 le nombre de degrés de liberté. Dans les Tables 4 et 5, les coefficients en noir indiquent que, suite au test de Students, les deux variables ne sont pas corrélées car H0 est acceptée pour un seuil de confiance de 99% alors que les coefficients en rouge sont significativement corrélés. Dans la vaste majorité des cas, les variables explicatives n'apparaissent pas corrélées de manière significative. Néanmoins, de fortes valeurs de corrélation statistiquement significatives sont trouvées dans le cas de la série courte (2001-2004). Cependant, ces valeurs et leur significativité ne se retrouvent pas dans le cas de la longue série.

L'hypothèse 1 du modèle de MLR n'étant pas toujours vérifiée selon les résultats des corrélations, nous avons regardé les conséquences de la dépendance des variables explicatives entre elles. Pour évaluer les répercussions de cette dépendance, nous avons regardé la variation des coefficients de régression et de leur erreur lors de l'ajout ou de la suppression d'une variable explicative dans le modèle de MLR. Pour cela, nous avons effectué 3 MLR pour le CH₄ à Lauder pour la période de 2001 à 2004. Sur cette période, les couples de variables explicatives Aérosols/QBO, Tendance/Solaire et QBO/ENSO apparaissent corrélés. Les coefficients de régression sont calculés une première fois avec toutes les variables explicatives, puis en supprimant une variable explicative du couple de variables corrélées et

une troisième fois en supprimant l'autre variable explicative du couple. La Figure 23 illustre les résultats de ces trois MLR, elle présente les valeurs des coefficients de régression en fonction des différentes variables explicatives avec l'erreur associée au coefficient. La Figure 23a montre les changements associés à l'ajout ou à la suppression des variables aérosols et QBO. Il est noté T (en noir) quand toutes les variables explicatives sont utilisées dans la MLR, SA (en bleu) lorsque la variable solaire est retirée de la MLR et SQ (en vert) quand la QBO est retirée. Les résultats des trois MLR sont proches donc l'ajout ou la suppression d'une variable explicative dans la MLR change très peu la valeur du coefficient de régression d'une autre variable explicative. Parfois un changement dans la valeur du coefficient est notable, par exemple pour la variable Aérosol, mais la valeur du coefficient est toujours couverte par les erreurs associées aux différentes MLR. Les Figures 23b et 23c représentent respectivement les changements associés à l'ajout ou à la suppression du couple de variables Tendance/Solaire et QBO/ENSO. Ces deux figures montrent les mêmes conclusions que pour la Figure 23a. Mais il est important de noter que la suppression de la variable Tendance est celle qui a le plus d'effet sur les autres variables explicatives. Les forçages externes utilisés comme variables explicatives selon la période étudiée ne sont pas toujours strictement indépendants. Cependant, cette corrélation entre les variables explicatives ne conduit pas à des changements marquants des valeurs des coefficients de la MLR ; d'autre part, les barres d'erreurs associées aux coefficients couvrent les variations associées à ce manque d'indépendance des variables explicatives.

3.2.2.2 Hypothèse 2

La plus petite longueur de séries utilisées est à Wollong pour le CH_4 , où la MLR est faite sur 2 ans soit $N=24$. Alors que la plus grande longueur de séries utilisées est à Lauder pour le NO_2sr , où la MLR est faite sur 17 ans soit $N=216$. Le nombre de variables explicatives (n) est 6 pour toutes les stations et toutes les espèces. Dans toutes les configurations, la longueur de la série est supérieure au nombre de variables explicatives.

3.2.2.3 Hypothèse 3

Pour tester si les résidus suivent une loi normale de moyenne nulle et d'écart-type constant, nous avons effectué un test du χ^2 d'adéquation décrit dans la section 3.1 de ce chapitre. Ici, l'hypothèse H_0 est : les résidus suivent une loi normale de moyenne nulle et d'écart-type constant. Dans toutes les configurations, l'hypothèse H_0 n'est pas refusée avec un risque de première espèce de 0,01. Nous pouvons donc conclure que les résidus issus du modèle de régression suivent une loi normale de moyenne nulle et d'écart-type constant.

3.2.2.4 Hypothèse 4

Pour connaître l'auto-corrélation des résidus, un calcul de corrélation croisée est effectué sur une fenêtre (F) de 20 mois avec un décalage (lag) allant de 1 à 20 mois. La significativité de cette corrélation

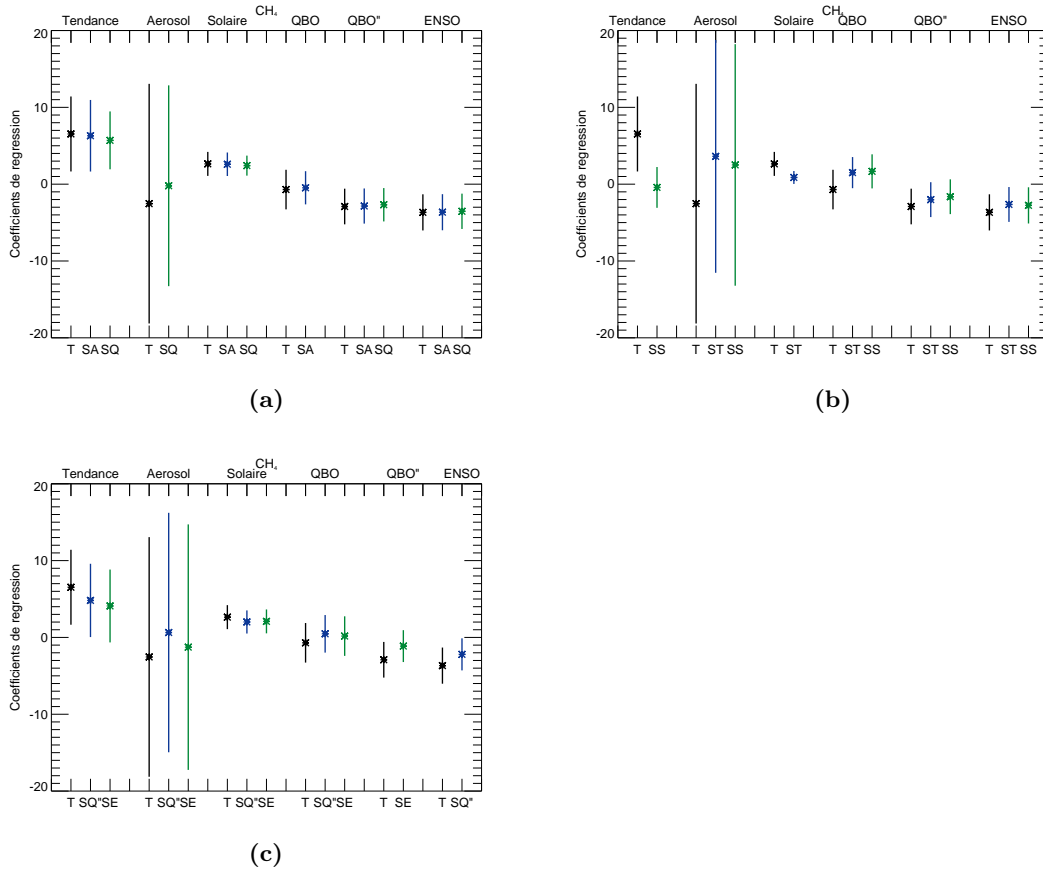


Fig. 23. — Valeur des coefficients de corrélation issus de la MLR à Lauder pour le CH_4 sur la période de 2001-2004. a) résultats de la MLR pour le couple Aérosol/QBO en noir avec toutes les variables explicatives, en vert en supprimant la variable QBO et en bleu en supprimant la variable Aérosol. b) résultats de la MLR pour le couple Solaire/Tendance en noir avec toutes les variables explicatives, en vert en supprimant la variable Solaire et en bleu en supprimant la variable Tendance. c) résultats de la MLR pour le couple QBObis/ENSO en noir avec toutes les variables explicatives, en vert en supprimant la variable QBO" et en bleu en supprimant la variable ENSO.

croisée est définie par un intervalle de confiance Ic (E7). La taille de la fenêtre impose que le calcul de Ic s'appuie sur une loi de Students.

$$Ic = \pm \frac{T_{\alpha, F-1}}{\sqrt{F}} \quad (E7)$$

Ic est l'intervalle de confiance, T est donné dans la table de la loi Students avec α le risque de première espèce et $F-1$ le nombre de degrés de liberté. Pour un seuil à 99% et une fenêtre fixée à 20 mois, $Ic = 0,63$. Les Figures 24a et 24b représentent respectivement l'auto-corrélation des résidus pour le CH_4 à Lauder et pour le NO_{2sr} à Lauder. Pour le CH_4 l'auto-corrélation des résidus n'est pas significative pour un seuil à 99% alors que pour le NO_{2sr} l'auto-corrélation des résidus est significative pour un décalage de 1 mois. Dans certaines configurations d'application du modèle de MLR et pour certaines espèces, les résidus peuvent être auto-corrélés et l'hypothèse 4 n'est pas vérifiée.

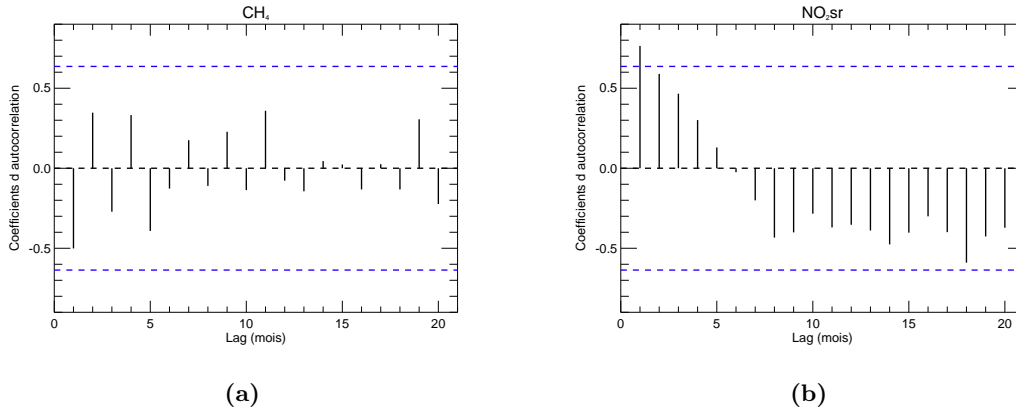


Fig. 24. — Coefficients d'auto-corrélation des résidus à Lauder pour a) CH_4 et b) NO_{2sr} . La ligne pointillée bleue est le seuil de confiance fixé à 99%.

3.2.2.5 Hypothèse 5

Le calcul de la corrélation croisée entre les résidus et les variables explicatives et de son seuil de significativité ont été évalués de la même façon que l'hypothèse 4. Les Figure 25a et 25b représentent respectivement la corrélation entre les résidus et les variables explicatives pour le CH_4 à Lauder et pour le NO_{2sr} à Lauder. Pour le CH_4 , la corrélation des résidus avec les différents forçages externes n'est pas significative pour un seuil à 99%. Pour le NO_{2sr} , seule la corrélation entre la tendance et les résidus n'est pas significative pour un seuil à 99%; sinon pour tous les autres forçages, on note une corrélation significative pour certains décalages. Dans certaines configurations d'application du modèle de MLR et pour certaines espèces, les résidus et les variables explicatives peuvent être corrélés et l'hypothèse 5 n'est pas vérifiée.

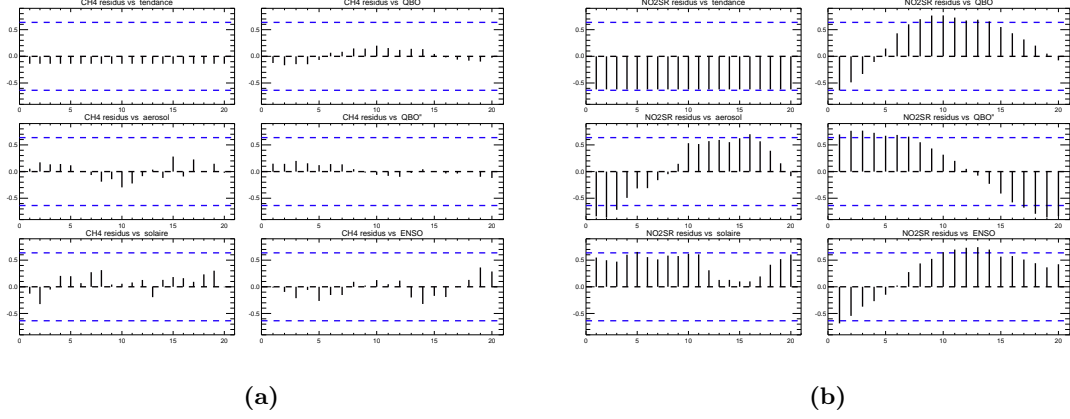


Fig. 25. – Coefficients de corrélation entre les résidus et les variables explicatives à Lauder a) CH_4 et b) NO_2sr . La ligne pointillée bleue est le seuil de confiance fixé à 99%.

3.2.3 Transformation de Cochrane-Orcutt

La présence d'auto-corrélation des résidus dans certains cas invalide l'hypothèse 4 du modèle de MLR et est cohérente avec la corrélation entre résidus et variables explicatives (hypothèse 5). A partir de données chronologiques, le phénomène d'auto-corrélation, dans lequel des résidus successifs apparaissent auto-corrélés, est fréquent dans les modèles de MLR. Les résidus (ϵ) sont des variations plus ou moins aléatoires. Il est possible que des mécanismes mal définis ou pas pris en compte dans le modèle de MLR soient contenus dans les résidus. Cependant, la répercussion temporelle de ces mécanismes est limitée. Une modélisation de cette auto-corrélation des résidus est un point important dans les modèles de MLR. Pour les séries géophysiques, les résidus sont souvent supposés auto-corrélés au premier ordre (AR1) et peuvent être décrits sous cette forme :

$$\epsilon(t) = \Phi\epsilon(t-1) + \xi(t) \quad (\text{E8})$$

$\xi(t)$ est un bruit blanc, t est le temps allant de 1 à N et Φ est le coefficient d'auto-corrélation des résidus. Pour prendre en compte ce phénomène d'auto-corrélation dans le modèle de MLR, nous avons appliqué la transformation de Cochrane-Orcutt dans le modèle de regression [Tiao *et al.*, 1990]. Après cette transformation, l'équation de la MLR (E5) se réécrit :

$$\widehat{Y}(t) = Y(t) - \Phi Y(t-1) = \alpha_0(1 - \Phi) + \sum_k^n (\alpha_k X_k(t) - \Phi \alpha_k X_k(t-1)) + \xi(t) \quad (\text{E9})$$

Il est alors possible d'estimer Φ . Cette valeur de Φ est alors réinjectée dans l'équation ci-dessus pour produire une série temporelle d'une variable 'transformée' (dans laquelle l'auto-corrélation a été prise en compte et éliminée). Cette série est sujette à une MLR et l'auto-corrélation des résidus issus de cette seconde MLR a fortement chuté. La transformation est réitérée jusqu'à ce que le coefficient d'auto-corrélation converge vers une valeur constante. Les résidus (ξ) issus de cette nouvelle régression sont

caractérisés par une distribution normale centrée et leur coefficient d'auto-corrélation est très faible (Figure 26). Les hypothèses 2 et 4 sont vérifiées. La transformation de Cochrane-Orcutt ne modifie pas de manière significative les coefficients de la MLR mais les erreurs associées aux coefficients augmentent fortement ce qui permet une étude statistique plus robuste. Cependant cette transformation a ses limites, elle n'est pas robuste et significative lorsque l'échantillon considéré est petit, c'est-à-dire pour des séries correspondant à des périodes de courte durée [Tiao et al., 1990].

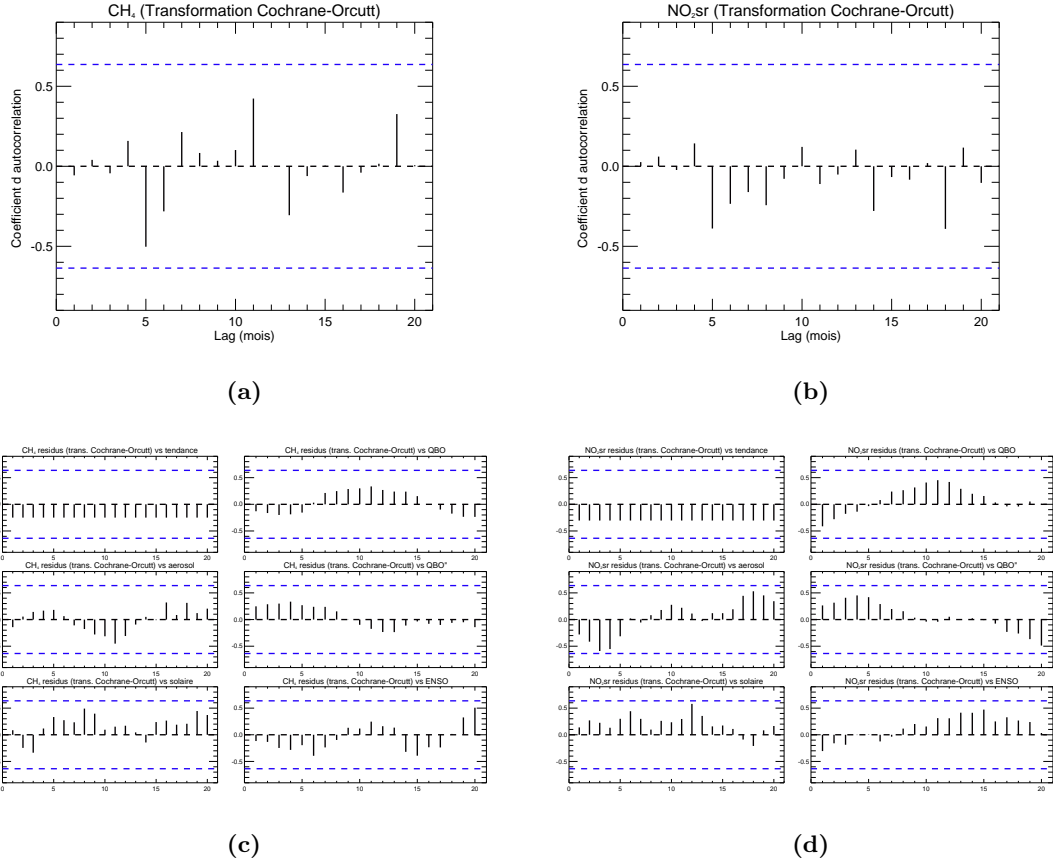


Fig. 26. — Coefficients d'auto-corrélation des résidus après la transformation de Cochrane-Orcutt à Lauder a) CH₄ et b) NO₂sr. Coefficients de corrélation entre les résidus et les variables explicatives après la transformation de Cochrane-Orcutt à Lauder c) CH₄ et d) NO₂sr. La ligne pointillée bleue est le seuil de confiance fixé à 99%.

3.2.4 Bootstrap

La transformation de Cochrane-Orcutt permet d'améliorer l'estimation des erreurs sur les coefficients de la MLR. Cependant, elle suppose une auto-corrélation de type AR1 et un échantillon de taille suffisante (*i.e.* une série suffisamment longue). Pour avoir une estimation des erreurs encore plus robuste, une autre approche est considérée, la méthode du *bootstrap* [Efron and Tibshirani, 1993]. Son application ne nécessite pas de d'hypothèses ou conditions particulières. Les tests montrent qu'elle

permet d'avoir une estimation robuste quelque soit la configuration d'application du modèle de MLR (courte ou longue période). C'est cette méthode qui sera retenue. La méthode du *bootstrap* est une méthode dite de ré-échantillonnage, qui est simple à appliquer et puissante. Cependant, cette méthode nécessite un calcul intensif puisque des nouvelles séries dites synthétiques sont créés à partir de la série originale et des résidus issus de la MLR. Cette approche améliore ainsi énormément la statistique de l'estimation des erreurs et donc la robustesse. Elle donne également des renseignements sur le modèle lui-même. Toutes ses informations sont obtenues sans recours à de nouvelles observations.

Une première MLR est effectuée pour obtenir une première estimation (dont les résultats sont marqués par un large chapeau) de $\widehat{Y_{fit}}$ et $\widehat{\epsilon(t)}$ d'après l'équation E5. Un nouveau échantillon ($\widehat{Y(t)}$) est construit aléatoirement d'après la procédure suivante : A chaque pas de temps, une valeur prise au hasard de $\epsilon(t)$ est ajoutée à $\widehat{Y_{fit}}$. Une valeur de $\epsilon(t)$ peut être utilisée plusieurs fois car elle est remise après chaque tirage. Une MLR est effectuée sur cet échantillon avec les variables explicatives X_n . Les coefficients de régression sont stockés. La procédure est répétée 10000 fois. Nous disposons alors de 10000 estimations pour les coefficients $\widehat{\alpha_n}$. La moyenne de ces 10000 estimations d'un coefficient de régression est définie comme sa valeur ($E(\widehat{\alpha_n}) = \alpha_n$) et l'écart type de ces estimations comme l'erreur associée ($\sigma(\widehat{\alpha_n}) = \alpha_n$). Avec la méthode du *bootstrap*, il est possible de prendre en compte l'auto-corrélation des résidus. Pour cela l'ajout des résidus à $\widehat{Y_{fit}(t)}$ se fait par blocs de longueur τ . A un pas de temps, t , les résidus de $\epsilon(t)$ jusqu'à $\epsilon(t+\tau)$ sont additionnés à $\widehat{Y_{fit}(t)}$ jusqu'à $\widehat{Y_{fit}(t+\tau)}$. Cette prise en compte de l'auto-corrélation des résidus ne fait apparaître aucune hypothèse supplémentaire sur le type de modèle d'auto-corrélation des résidus contrairement à la transformation de Cochrane-Orcutt. Dans notre cas, quelque soit la valeur de τ entre 1 et 11, l'estimation des coefficients de régression et leur erreur ne changent pratiquement pas. Pour cette raison, la valeur de τ est fixé à 10 dans la thèse, même si cette valeur n'a aucune influence sur les résultats du *bootstrap*.

La méthode du *bootstrap* vérifie l'hypothèse 2 mais les tests montrent que les hypothèses 4 et 5 ne sont pas vérifiées dans toutes les configurations d'application du modèle de MLR. Cependant, l'auto-corrélation des résidus (hypothèse 4) est prise en compte dans l'estimation de l'erreur de chaque coefficient de MLR. Pour ces raisons, tout au long de cette thèse, nous utilisons la méthode du *bootstrap* pour estimer les coefficients de régression et leurs erreurs.

3.2.5 Coefficient de détermination

Le coefficient de détermination, R^2 , permet de mesurer la variance de la série brute expliquée par l'ensemble des variables explicatives considérées par le modèle de MLR. Le coefficient est défini comme le rapport entre la dispersion expliquée par le modèle de MLR (SCR) et la dispersion totale (SCT). Le R^2 peut aussi se calculer à partir des coefficients de régression centrés-réduits α'_n et des coefficients de corrélations entre la variable expliquée Y et chacune des variables explicatives X_n .

$$R^2 = \frac{\sum (\widehat{Y_i} - \bar{Y})^2}{\sum (Y_i - \bar{Y})^2} = \frac{SCR}{SCT} = \sum_{j=1}^n \alpha'_n \rho_{YX_j} \quad (E10)$$

Si $R^2=1$ le modèle de régression est parfait et la variance est totalement expliquée par les variables explicatives. Si $R^2 \sim 0$ le modèle de régression n'est pas du tout adapté. Dans les cas intermédiaires, $0 < R^2 < 1$, il y a une partie de la variance de la série qui n'est pas expliquée par le modèle de MLR. La variabilité de la série a soit une composante aléatoire (bruit blanc, naturel ou lié à la mesure), soit une composante forcée, c'est-à-dire une variable explicative, est manquante dans le modèle de MLR. Il est également possible qu'une partie de variabilité non expliquée ait pour origine la non validation des hypothèses du modèle de MLR (relation linéaire entre les forçages externes et la série chronologique, indépendance entre les forçages, ...). Par exemple, si la relation entre un forçage externe et la réponse de la composition chimique n'est pas linéaire, le modèle de MLR ne pourra pas rendre compte de l'ensemble de la réponse.

3.2.6 Test de significativité du modèle de MLR

Après avoir estimé les coefficients de la MLR et leurs barres d'erreur, il est aussi nécessaire de conclure sur l'existence ou non d'une relation entre forçages externes et la variabilité de la composition chimique. Pour tester la robustesse globale du modèle de MLR, un test de Fisher est réalisé. L'hypothèse nulle H_0 est : Y est indépendante des variables explicatives ; et l'hypothèse alternative H_1 est : Y dépend au moins d'une variable explicative. La statistique du test s'appuie sur le calcul de F_{cal} (E11) qui suit une loi de Fisher.

$$F_{cal} = \frac{R^2(N - n - 1)}{N(1 - R^2)} \quad (E11)$$

R^2 est le coefficient de détermination, n est le nombre de variables explicatives et N est la longueur des variables. H_0 est rejetée si $F_{cal} > F_{\alpha, n, N-n-1}$. F est donné dans la table de Fisher avec α le risque de première espèce, et n et N-n-1 les nombres de degrés de liberté. Dans toutes les configurations, le modèle de MLR appliqué avec la méthode du *bootstrap* est accepté avec un seuil de confiance à 95%.

3.2.7 Test de significativité des coefficients de régression

La significativité des coefficients de régression issus du modèle de MLR est vérifiée à partir du test de Students. L'hypothèse nulle H_0 est : les coefficients α_n sont nuls ; et l'hypothèse alternative H_1 est : les coefficients α_n sont non nuls. La statistique du test s'appuie sur le calcul de T_{cal} (E12) qui suit une loi de Students.

$$T_{cal} = \frac{\alpha_n}{\sigma(\alpha_n)} \quad (E12)$$

α_n est le coefficient de régression et $\sigma(\alpha_n)$ est son écart type. H_0 est rejetée si $T_{cal} > T_{\alpha, N-n-1}$. T est donné dans la table de Students avec α le risque de première espèce et N-n-1 le nombre de degrés de liberté. N est la longueur de la série brute et n le nombre de variables explicatives.

3.3 Analyse spectrale

3.3.1 Périodogramme de Lomb et Scargle

Le périodogramme normalisé est un outil mathématique permettant de représenter les différentes composantes spectrales d'un signal. Lorsque l'intervalle de temps entre deux points est régulier, la méthode de base pour l'analyse spectrale est la transformée de Fourier. Le périodogramme obtenu est dit classique et son comportement statistique est bien connu. Par contre, cela devient plus compliqué lorsque les intervalles de temps ne sont plus réguliers ou lorsque des trous sont présents dans la série. Dans ce cas, il est possible d'utiliser le périodogramme de Lomb et Scargle [Lomb, 1976; Scargle, 1982]. Le principe de son algorithme est basé sur l'interpolation des données avec une série d'harmoniques, en utilisant la méthode des moindres carrés. L'avantage de ce périodogramme est qu'il garde dans ce cas irrégulier le comportement statistique simple du périodogramme classique du cas régulier. La densité de puissance du périodogramme augmente proportionnellement avec le nombre d'observations N . Ainsi, lorsque l'échantillon augmente, un signal devient plus aisément détectable. Ceci se traduit par une amplitude plus grande du pic dans le périodogramme. La routine utilisée dans cette thèse pour les calculs des périodogrammes permet de fixer un seuil de significativité. Les pics dépassant ce seuil montrent des périodes significatives dans la série analysée, avec une probabilité fixée à 5% de chances d'avoir raison à tort (ou encore d'avoir raison avec une probabilité de 95%). Si une période (*i.e.* composante fréquentielle) est faible ou mal définie dans la série, l'amplitude du périodogramme à cette période ne dépassera pas le seuil de significativité.

3.3.2 Tests de sensibilité

Pour mieux illustrer et comprendre les avantages et les inconvénients de la méthode de Lomb et Scargle, nous avons effectué des tests de sensibilité à partir d'une série idéalisée. Cette série idéalisée est composée d'une somme de cosinus avec des périodes de 6, 12, 36 et 60 mois. La longueur (N) de la série est de 240 mois avec un pas de temps de 1 mois.

3.3.2.1 Effet du pas de temps irrégulier

Le premier test de sensibilité réalisé permet de comprendre l'effet des données manquantes dans la série. Ceci peut aussi être vu comme un cas de pas de temps irrégulier. Nous avons retiré aléatoirement à la série idéalisée un certain % d'observations construisant ainsi 4 séries ayant un certain % de données manquantes. La Figure 27 représente le périodogramme de la série idéalisée (en noir) et de 4 autres séries construites à partir de la série idéalisée avec 10% (en rouge), 25% (en bleu), 40% (en vert) et 50% (en jaune) de données manquantes. Les 5 périodogrammes présentent des pics significatifs à 6, 12, 36 et 60 mois. Des données manquantes dans une série diminuent l'amplitude du pic mais pas la détection. Pour que les pics détectés ne dépassent pas le seuil de significativité, il faut que le nombre de

données manquantes soit supérieur à 80%. Dans cette thèse, nous analysons des séries qui ont moins de 30% de données manquantes.

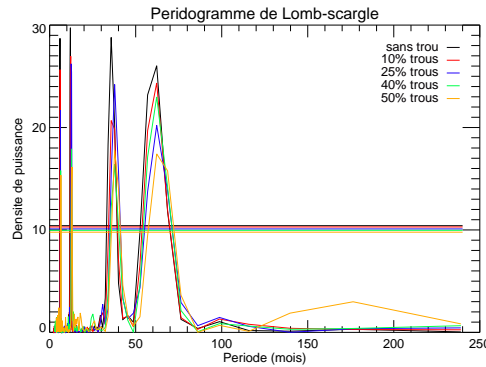


Fig. 27. – Périodogrammes pour un signal idéalisé en noir, pour un signal idéalisé avec 10% de données manquantes en rouge, avec 25% de données manquantes en bleu, avec 40% de données manquantes en vert et avec 50% de données manquantes en jaune. Les lignes horizontales représentent le seuil à 95% de significativité de chaque signal.

3.3.2.2 Effet de la longueur de la série

Ce deuxième test de sensibilité va permettre de comprendre l'effet de la longueur de la série (c'est-à-dire la taille de l'échantillon) sur la détection et la significativité des pics du périodogramme. La Figure 28 montre les périodogrammes pour cinq séries idéalisées sans données manquantes de longueurs différentes. Pour la série dont la longueur est inférieure au double de la plus grande période détectable ($N < 60 \times 2$, courbe en vert), le périodogramme indiquent les pics associés aux périodes de 6, 12 et 36 mois mais seul le pic de 12 mois est significative. Pour une série dont la longueur est le double de la plus grande période ($N = 60 \times 2$, courbe en noir), le périodogramme présente des pics significatifs pour les quatre périodes de 6, 12, 36 et 60 mois ; l'amplitude de ces pics dépasse très légèrement le seuil de significativité à l'exception du pic de 12 mois. Les pics des plus basses fréquences sont aplatis et ils semblent légèrement décalés vers les hautes fréquences à 36 mois et vers les basses fréquences à 60 mois. Pour une série dont la longueur est plus du double de la plus grande période détectable ($N > 60 \times 2$, courbe en rouge, bleu et jaune), le périodogramme présente 4 pics significatifs pour les 4 périodes de la série. L'amplitude des pics augmente avec le nombre de points. Plus le nombre de points augmente, plus les pics sont distincts et centrés autour de la période attendue. Les séries analysées spectralement dans cette thèse ont une longueur de 156 points, d'après cette méthode il ne sera pas réaliste de regarder des périodes de plus de 6 ans soit 71 mois car la méthode risque de ne plus être robuste au delà de cette période seuil.

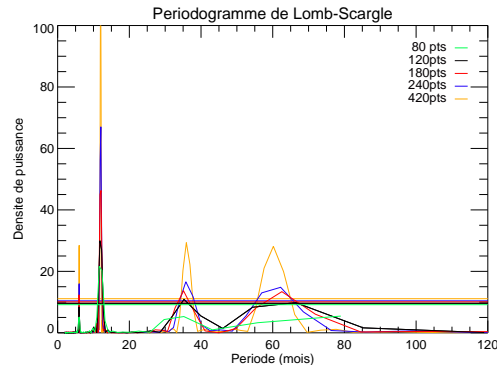


Fig. 28. — Périodogrammes pour un signal idéalisé de 80 points en vert, de 120 points en noir, de 180 points en rouge, de 240 points en bleu, de 420 points en jaune. Les lignes horizontales représentent le seuil à 95% de significativité de chaque signal.

3.3.2.3 Effet du cycle saisonnier

Ce troisième test de sensibilité permet d'illustrer l'effet d'un fort cycle connu sur le périodogramme d'une série. La Figure 29a montre l'évolution temporelle de trois signaux synthétiques ; la courbe noire est la série idéalisée dite classique (déjà considérée ci-dessus), la courbe rouge correspond à la série idéalisée avec un facteur multiplicateur de 10 devant le cosinus du cycle à 12 mois et la courbe bleue la série idéalisée avec un facteur multiplicateur de 20 devant le cosinus du cycle à 12 mois. La courbe verte est la série bleue qui a été désaisonnalisée à partir de la méthode des moyennes mensuelles décrite dans la section 3.1. Les espèces chimiques ont très souvent un cycle saisonnier aussi marqué que la courbe bleue. La Figure 29b montre les périodogrammes des séries décrites au-dessus. Le périodogramme de la série classique montre les 4 périodes de la série. Le périodogramme de la série rouge et le périodogramme de la série bleue ne présente que le pic à 12 mois. La périodicité à 12 mois est trop dominante pour pouvoir détecter d'autres périodes. Le périodogramme de la courbe verte ne montre pas les pics à 6 et 12 mois qui ont été éliminés par la désaisonnalisation mais les pics à 36 et 60 mois apparaissent maintenant très clairement. Cette figure démontre l'importance de la désaisonnalisation des séries avant de faire l'analyse spectrale.

3.3.2.4 Effet de la tendance

Ce quatrième test de sensibilité donne une indication sur l'effet de la tendance d'une série sur le périodogramme. La Figure 30a représente deux séries en fonction du temps ; la courbe noire représente la série idéalisée avec une faible tendance ajoutée et la courbe rouge est cette même série dont la tendance a été éliminée. La Figure 30b montre le périodogramme de ces deux séries. Les deux périodogrammes détectent les 4 périodes mais l'amplitude des pics du périodogramme de la série sans tendance est plus grande et les pics sont plus distincts que pour la série avec tendance. De plus, le périodogramme de la série avec tendance montre des pics à basses fréquences qui sont générés par la tendance et non par une période définie.

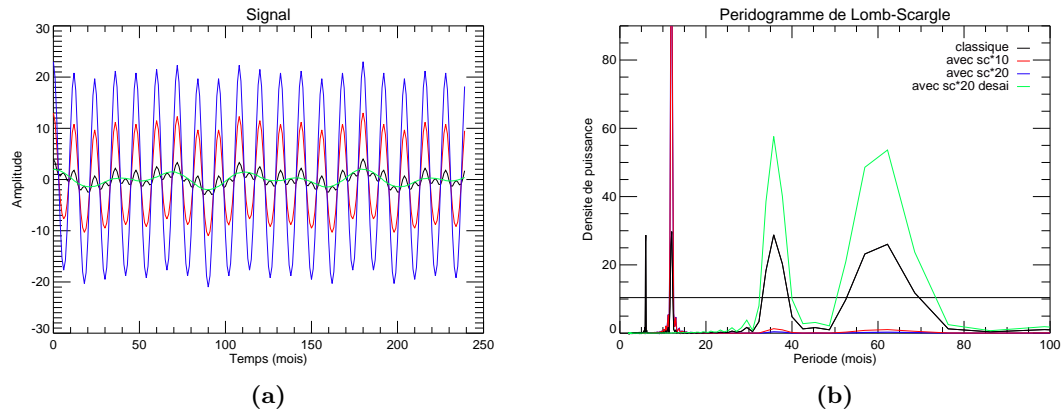


Fig. 29. — a) Amplitude du signal en fonction du temps, en noir le signal idéalisé sans coefficient devant le cycle à 12 mois, en rouge avec un coefficient multiplicateur de 10 devant le cycle à 12 mois, en bleu avec un coefficient multiplicateur de 20 devant le cycle à 12 mois et en vert le signal bleu qui est désaisonnalisé à partir la méthode des moyennes mensuelles. b) Périodogrammes des séries. La ligne horizontale représente le seuil à 95% de significativité pour tous les signaux.

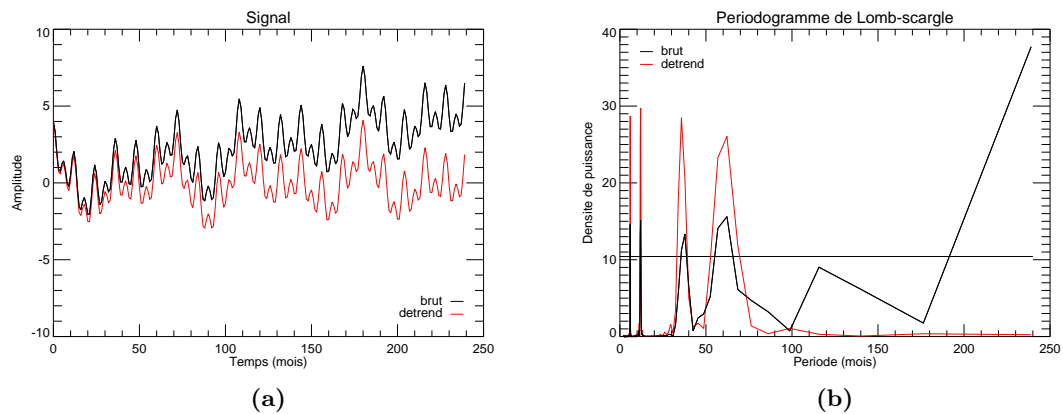


Fig. 30. — a) Amplitude du signal en fonction du temps, en noir le signal idéalisé tendance, en rouge le signal noir dont la tendance est retirée. b) Périodogrammes des séries. La ligne horizontale représente le seuil à 95% de significativité pour les deux signaux

3.3.2.5 Effet du bruit

Le dernier test de sensibilité permet d'illustrer l'effet du bruit présent dans une série sur le périodogramme. La Figure 31a représente deux séries en fonction du temps ; la courbe en noir est la série brute classique, la courbe en rouge représente la même série classique à laquelle un faible bruit gaussien a été ajouté et la courbe en bleu est la série classique à laquelle un terme de bruit gaussien plus important que pour la courbe rouge a été ajouté. La Figure 31b montre les périodogrammes des trois signaux. Le périodogramme de la série noire détecte les quatre périodes avec une amplitude largement supérieure au seuil de significativité. Le périodogramme de la série rouge présente également les quatre périodes mais avec une amplitude plus faible. Le périodogramme de la série bleue détecte les quatre périodes mais l'amplitude des pics n'est pas assez grande pour être significative. Plus une série est bruitée, plus l'amplitude des pics du périodogramme est faible. Si le bruit dans une série est trop important, il est donc possible que le périodogramme ne détecte plus aucune période significative.

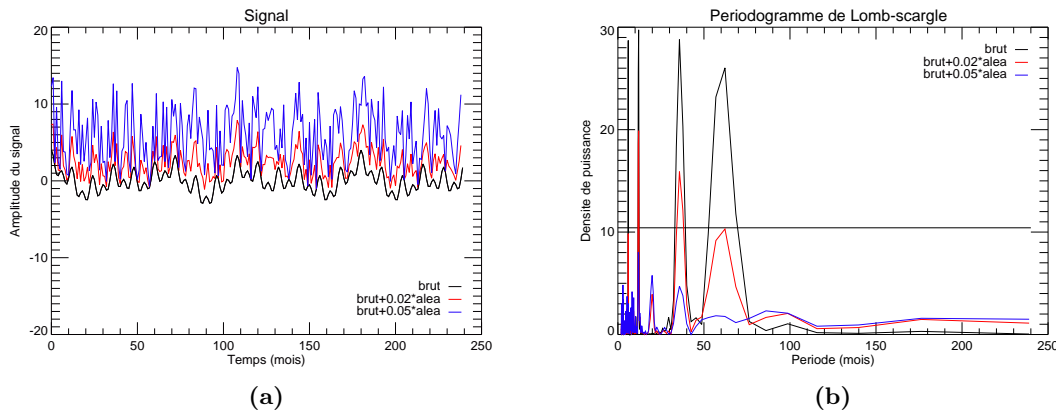


Fig. 31. — a) Amplitude du signal en fonction du temps, en noir le signal idéalisé, en rouge le signal idéalisé avec l'ajout d'un bruit avec coefficient multiplicateur de 0,02 et en bleu le signal idéalisé avec l'ajout d'un bruit avec coefficient multiplicateur de 0,05. b) Périodogrammes des signaux. La ligne horizontale représente le seuil à 95% de significativité pour tous les signaux

3.4 Détection de ruptures

Une forme particulière de non-stationnarité dans une série géophysique est un changement plus ou moins brutal de sa moyenne à un instant donné. Ce phénomène nommé rupture se manifeste souvent comme des 'sauts', positifs ou négatifs, plus ou moins abruptes dans les séries. Comme nous allons analyser ce type de variabilité dans le chapitre 5, il est nécessaire de définir le cadre de détection de ces ruptures. Le modèle mathématique de la rupture est le suivant : soit X_i est une série de variables aléatoires normales, indépendantes et de variance constante.

$$X_i = \begin{cases} \mu + \epsilon_i & i = 1 \dots \tau \\ \mu + \delta + \epsilon_i & i = \tau + 1 \dots N \end{cases} \quad (E13)$$

où μ est une constante, ϵ_i est un bruit blanc, τ est l'instant de la rupture, δ est l'amplitude de la rupture et N est la longueur de la série.

La statistique utilisée dans cette thèse pour détecter une rupture dans une série est le test de Welch qui est une adaptation du test de Students. Ce test n'impose pas de condition d'application et permet de tester statistiquement l'hypothèse d'égalité de deux moyennes dans deux échantillons de variances inégales. Les deux échantillons proviennent de la même série temporelle et couvre deux périodes successives de cette série. On teste si une rupture est présente juste entre les deux périodes. L'hypothèse nulle H_0 est : les deux échantillons ont la même moyenne ; et l'hypothèse alternative H_1 est : les deux échantillons sont de moyennes différentes. La statistique du test s'appuie sur le calcul du T_{cal} (E14) qui suit une loi de Students.

$$T_{cal} = \frac{\bar{X}_1 - \bar{X}_2}{\sqrt{\frac{s_1^2}{N_1} + \frac{s_2^2}{N_2}}} \quad (E14)$$

\bar{X} , s^2 et N sont respectivement la moyenne, la variance et la taille des deux échantillons.

H_0 est rejetée si $T_{cal} > T_{\alpha, \nu}$. T est donné dans la table de Students avec α le risque de première espèce et ν (E15) le nombre de degrés de liberté. Les degrés de liberté sont calculé d'après l'équation suivante.

$$\nu = \frac{\left[\frac{s_1^2}{N_1} + \frac{s_2^2}{N_2}\right]^2}{\frac{s_1^4}{N_1^2(N_1-1)} + \frac{s_2^4}{N_2^2(N_2-1)}} \quad (E15)$$

Avant de réaliser le test de détection de ruptures, la tendance et le cycle saisonnier sont éliminés de la série analysée. Ensuite, pour chaque pas de temps de la série, le T_{cal} est calculé sur une fenêtre de taille F centrée sur l'instant considéré et couvrant les 2 périodes successives de durée $F/2$. A un instant t , le $T(t)$ et le $\nu(t)$ sont calculés à partir des séries $X_1(t-F/2)$ et $X_2(t+F/2)$. Pour chaque pas de temps de la série analysée, si le T_{cal} est significatif alors l'algorithme détecte une rupture dans la série et enregistre son amplitude δ .

Pour illustrer l'efficacité de cet algorithme de détection de ruptures, on considère une série idéalisée dont les caractéristiques, y compris les ruptures, sont connues. La Figure 32a montre une série idéalisée composée d'une somme de cosinus avec des périodes de 6, 12, 36 et 60 mois. Pour que la série soit proche de nos séries géophysiques, un facteur multiplicateur est ajouté devant le cycle à 12 mois ainsi qu'une tendance linéaire. Des sauts de quatre amplitudes différentes sont imposés aléatoirement dans cette série. Ces ruptures créées sont marquées sur la Figure 32a par un trait vertical rouge et leur amplitude est indiqué dessus. La Figure 32b montre la série de départ qui est lissée avec une moyenne

glissante de 3 ans (courbe noire) qui est la taille de la fenêtre choisie pour la détection de ruptures. La détection de ruptures est réalisée sur les séries lissées. Les ruptures créées sont toujours marquées en rouge avec l'amplitude du saut et son numéro de classement (par ordre décroissant de la taille de l'amplitude). Les traits verticaux bleus représentent les ruptures détectées par la méthode. Leur amplitude et leur numéro de classement sont également indiqués. La comparaison entre les ruptures créées et détectées indique que la méthode n'est pas capable de détecter les petites ruptures, c'est-à-dire dans notre exemple les sauts dont l'amplitude est inférieure à 1. Les deux premières positions du classement sont inversées entre les ruptures créées et détectées. La plus forte rupture créée est également détectée avec un léger décalage dans le temps. La Figure 32c présente le classement des ruptures en fonction de leur amplitude. Les ruptures créées sont représentées en losange rouge et les ruptures détectées en étoile bleue. La cohérence entre les grandes ruptures créées et détectées est notable. La Figure 32c montre également la distribution des ruptures créées et détectées sous forme de diagramme en boîte. La moyenne de l'amplitude des ruptures est représentée par un symbole. Le diagramme en boîte positionné en $x=12$ correspond aux ruptures créées et est calculé avec toutes les ruptures; de ce fait sa moyenne est inférieure à celle de ruptures détectées et la forme de leur distribution n'est pas en accord car seules les ruptures les plus fortes sont détectées. Le diagramme en boîte positionné en $x=14$ correspond aux ruptures créées mais est calculé en considérant uniquement les ruptures créées les plus fortes et le même nombre de ruptures que celui des ruptures détectées. Ce diagramme en boîte est alors comparable au diagramme en boîte des ruptures détectées, les valeurs moyennes et les distributions sont similaires.

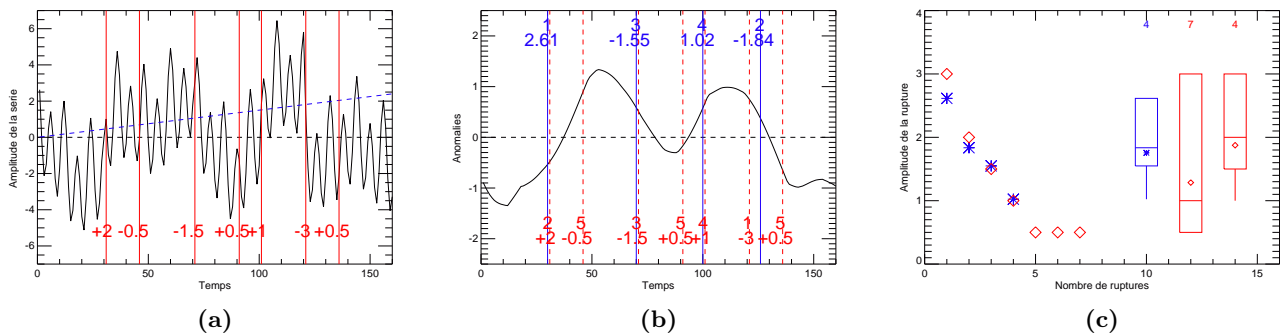


Fig. 32. — a) Evolution temporelle de la série idéalisée en noir. Les traits verticaux rouges sont les ruptures créées, le chiffre indique leur amplitude. b) Evolution temporelle de la série idéalisée après lissage avec une moyenne glissante à 3 ans. Les traits verticaux bleus et rouges sont respectivement les ruptures détectées et créées; le premier chiffre correspond au classement de la rupture en terme de valeur absolue de l'amplitude de la rupture et le second chiffre correspond à l'amplitude de la rupture. c) l'axe horizontal indique le classement par ordre décroissant des amplitudes des ruptures, en étoile bleue pour les ruptures détectées et en losange rouge pour les ruptures créées. Les diagrammes en boîte bleu et rouge sont associés respectivement aux ruptures détectées et aux ruptures créées. Les symboles sont la valeur moyenne de chaque distribution. Le chiffre au dessus est le nombre de point de la distribution.

Chapitre 4

Evaluation de la composition chimique stratosphérique des CCM par les long séries de mesures du NDACC

Sommaire

4.1	Introduction	88
4.2	Observations and model simulations	91
4.2.1	Observations	91
4.2.2	Model Simulations	93
4.3	Method	94
4.4	Results	98
4.4.1	Annual Cycle in Stratospheric Chemical Composition	98
4.4.1.1	Seasonal Cycle in Ozone	98
4.4.1.2	Seasonal Cycle in Long-Lived Species CH ₄ and N ₂ O	99
4.4.1.3	Seasonal Cycle in Nitrogen Oxide Species NO ₂ and HNO ₃	99
4.4.1.4	Seasonal Cycle in Chlorine Reservoirs Species HCl, ClONO ₂ and their sum	102
4.4.2	Total and Interannual Variability of the Stratospheric Chemical Composition	106
4.4.2.1	Ozone Variability	106
4.4.2.2	CH ₄ and N ₂ O Variability	107
4.4.2.3	NO ₂ and HNO ₃ Variability	108
4.4.2.4	HCl, ClONO ₂ and their sum Variability	109
4.4.3	Inter-annual Variability explained by external forcings	110
4.4.3.1	Ozone Inter-Annual Variability	112
4.4.3.2	CH ₄ and N ₂ O Inter-Annual Variability	113
4.4.3.3	NO ₂ and HNO ₃ Inter-Annual Variability	113

4.4.3.4	HCl, ClONO ₂ and their sum Inter-Annual Variability	115
4.4.4	Absolute contributions of external forcings to interannual variability	116
4.4.4.1	Total Ozone sensitivity to external forcings	118
4.4.4.2	Total CH ₄ , N ₂ O, NO ₂ and HCl Sensitivity to main external forcings	123
4.5	Summary and conclusions	125

Résumé

Ce chapitre est l'objet d'un article qui sera soumis prochainement dans *Journal of geophysical Research*, dont le résumé est ci-dessous.

La variabilité de la composition chimique stratosphérique varie sur un large spectre d'échelles temporelles, allant de la journée à des décennies. Une partie de cette variabilité est dite forcée et implique des interactions chimie-climat. Cette variabilité inter-annuelle forcée est induite par des forçages externes bien identifiés tels que l'oscillation quasi-biennale (QBO), l'oscillation australe-El Niño (ENSO), les aérosols volcaniques, l'activité solaire et les émissions anthropiques. A partir d'observations, en particulier d'ozone, de nombreuses études ont été réalisées pour comprendre la relation entre les forçages externes et la composition chimique et pour expliquer l'influence des forçages externes sur la variabilité de la composition chimique stratosphérique [Robock, 2000; Baldwin *et al.*, 2001; Brunner *et al.*, 2006; Steinbrecht *et al.*, 2006; Randel and Thompson, 2011]. Ces liens entre la composition chimique stratosphérique et les forçages externes sont également étudiés en utilisant des modèles de chimie-climat (CCM) [WMO, 2003; CCMVal, 2010]. Le but de cette étude est d'évaluer la capacité des CCM à quantifier le lien entre les forçages externes et la composition chimique stratosphérique au dessus d'un site de mesures. Au lieu d'utiliser les données satellitales en moyenne zonale, cette évaluation des CCM est basée sur une comparaison avec des longues séries temporelles d'observations du réseau NDACC (Network for the Detection of Atmospheric Composition Change). Ces observations depuis le sol sont utilisées comme les mesures de références dans la validation des données satellitaires. Cependant, la principale limite des données NDACC est son échantillonnage spatial qui n'est pas homogène par rapport aux satellites. Dans notre étude pour quantifier la réponse de la composition chimique stratosphérique aux forçages externes, nous effectuons des régressions linéaires multiples sur des séries temporelles d'observations et des simulations de CCM, en utilisant les forçages externes comme variables explicatives. Les espèces étudiées sont des colonnes d'ozone, d'espèces azotées, d'espèces chlorées et de méthane. Les modèles sont capables de reproduire la déviation autour de la moyenne zonale qui est visible dans les observations. Le cycle saisonnier est la principale variabilité des espèces étudiées, hormis pour les espèces à longue durée de vie. Après désaisonnalisation, la variabilité linéaire expliquée par les forçages externes est plus importante dans les modèles par rapport aux observations. Pour l'ozone, le signal QBO et le signal solaire dominant dans les régions tropicales, alors que la tendance est plus importante dans les régions polaires. Pour les espèces à longue durée de vie, le terme dominant pour expliquer la variance inter-annuelle est la tendance. L'analyse des espèces azotées montrent que les modèles ont tendance à surestimer la contribution des aérosols volcaniques en particulier aux hautes latitudes de l'hémisphère nord. Les espèces chlorées ne montrent pas de forçage dominant et la contribution de chaque forçage est similaire dans les observations et les modèles.

Dans ce chapitre, nous évaluons la capacité des modèles de chimie-climat à reproduire la composition chimique stratosphérique en comparaison avec les longues séries de mesures du NDACC décrites dans la section 2.2.1. Les simulations des CCM et les forçages externes utilisés sont décrits respectivement dans les sections 2.1.2.1 et 2.1.2.2. Notre étude est focalisée sur l'étude de la variabilité de la composition chimique stratosphérique. Dans une première partie (section 4.4.1), nous présentons une analyse sur le cycle saisonnier et sa déviation zonale, puis nous évaluons la variabilité totale qui peut être divisée en une variabilité saisonnière et une variabilité inter-annuelle (section 4.4.2). Dans la section 4.4.3, nous décrivons la part de la variabilité inter-annuelle qui peut être expliquée par les forçages externes. Puis nous détaillons la contribution des forçages externes sur la composition chimique stratosphérique (section 4.4.4). Dans une dernière partie, nous exposons nos conclusions.

4.1 Introduction

The variability of the stratospheric chemical composition occurs in a broad spectrum of time scales, ranging from day to decades, and of spatial scales. Some of this variability involves couplings between chemistry and dynamics and, more generally, chemistry-climate interactions and is driven by well identified external forcings such as the quasi-biennial oscillation (QBO), El Niño-Southern Oscillation (ENSO), volcanic aerosols, solar activity and anthropogenic emissions. These forcings are thought to be responsible for most of the inter-annual variability in stratospheric chemical composition. Many observational studies have attempted to explain how these external forcings affect stratospheric variability and to link variations in stratospheric chemical composition, in particular ozone, to these external forcings. Although several studies considered vertically resolved ozone datasets [Zawodny and McCormick, 1991; Brunner *et al.*, 2006; Randel and Thompson, 2011], the most commonly analysed datasets are satellite column ozone data. Studies of global satellite data records such as TOMS (Total ozone Mapping Spectrometer) or SAGE (Stratospheric Aerosol and Gas Experiment) have documented the impact of the QBO on column ozone [Bowman, 1989; Zawodny and McCormick, 1991; Randel and Cobb, 1994; Yang and Tung, 1994; Baldwin *et al.*, 2001; Randel and Wu, 2007]. Tropical column ozone variations were found to be approximately in phase with equatorial zonal wind near 30 hPa, an indicator of the QBO, whereas the extra-tropical column ozone anomalies tended to be out of phase with the tropical signal. Linear regressions showed that the mean amplitude of the QBO signal is about 2-4% of the mean column ozone [WMO, 1999]. The ENSO is also known to influence column ozone [Shiotani, 1992; Randel and Cobb, 1994; Steinbrecht *et al.*, 2006]. However, unlike the QBO, the effects of ENSO are mostly felt in the zonal direction (*i.e.* ENSO-driven variations in column ozone occurring mostly in the longitudinal direction). Another significant source of variability in ozone is the variations in stratospheric sulphate aerosols loading which is largely controlled by volcanic eruptions [Thomason *et al.*, 1997; McCormack *et al.*, 1997; Vernier *et al.*, 2011]. The strongest global ozone anomaly was observed just after the volcanic eruption of Mount Pinatubo in 1991 with a decrease of about 3-4% over a 2 years period following the eruption [Randel *et al.*, 1995]; larger drops in column ozone, of order 5-10%, were observed locally in northern hemisphere middle and high

latitudes [Bojkov *et al.*, 1993; Randel *et al.*, 1995; Coffey, 1996; Zerefos *et al.*, 1997; Robock, 2000]. Studies of ground-based ozone records extending over three decades has indicated the existence of a decadal variation in column ozone that is approximately in phase with the solar cycle [Angell, 1988; Zerefos *et al.*, 1997]. This is supported by analyses of global satellite ozone records since 1979 showing evidence for a decadal oscillation of column ozone with maximum amplitude ($\sim 2\text{--}4\%$) at low latitudes [Chandra and McPeters, 1994; McCormack *et al.*, 1997; Hood, 1997; WMO, 2007; Randel and Wu, 2007]. As noted by Solomon *et al.* [1996], the occurrence of two major volcanic eruptions nine years apart during each of the last two declining phases in solar activity could lead to some confusion in separating volcanic and solar effects on ozone. This should not strongly influence trend estimates for the long time records, but may have implications for isolation of the solar cycle in short observational records. Chandra [1991] also showed the possible importance of the phase of the QBO in the ozone response to solar variability. The effects of external forcings on the stratospheric variability of other chemical species have also been studied. The main focus was on the trend component of the variability. Nonetheless, in some of these studies, contributions of external forcings to other components of the variability were also analysed. For instance, variations in NO_2 column have already been decomposed and attributed to a range of forcings (QBO, ENSO, aerosols and solar activity) [Zawodny and McCormick, 1991; Liley *et al.*, 2000; Struthers *et al.*, 2004; Gruzdev, 2008; Cook and Roscoe, 2009; Dirksen *et al.*, 2011].

The links between stratospheric chemical composition and external forcings have also been investigated using coupled chemistry-climate models (CCMs) [WMO, 2003]. Obviously, the ability of a model to reproduce these links depends on its ability to simulate correctly the processes involved in the relationship between forcing and response. For example, the effects of solar variability on stratospheric composition involve photochemical processes such as the photolysis of molecular oxygen, radiative heating and the associated dynamical response [Wohltmann *et al.*, 2007; Gray *et al.*, 2010]. Also, the effects of varying stratospheric aerosol loading involve heterogeneous chemical processes and radiative heating [Robock, 2000; Wohltmann *et al.*, 2007].

In the framework of the international CCMVal/SPARC (Chemistry-Climate Model Validation activity/Stratospheric Processes And their Role in Climate) program, state-of-the-art CCMs forced by natural and anthropogenic external forcings have been used to simulate past changes in stratospheric chemical composition. Model-calculated climatologies (*i.e.* zonal mean state) and trends have been evaluated against a range of satellite observations [Eyring *et al.*, 2006; CCMVal, 2010]. In terms of global zonal mean distributions, most CCMs showed a reasonable agreement with observations with respect to ozone climatologies and column ozone trend. Model-calculated column ozone responses to external forcing were evaluated using multi linear regression analysis [CCMVal, 2010; Austin *et al.*, 2008]. The evaluation was carried out over large latitudinal bands representative of the tropics, mid-latitudes and polar regions. Regarding the QBO, models with forced or internally generated QBO were generally able to reproduce the latitudinal variations of the QBO signal in column ozone. Nonetheless, CCMs forced with observed QBO tended to overestimate the amplitude of the column ozone response. Some of the models with internally generated QBO had problems reproducing the periodicity of the

QBO and hence of the QBO-induced ozone signal [CCMVal, 2010]. For the ENSO, the column ozone signal was comparable in most CCMs but could not be assessed against observations because of the large interannual variability and the weakness of the ozone column signal in observations [CCMVal, 2010]. Regarding the aerosol loading, CCMs showed a considerable spread in their response to volcanic eruptions although most models were forced by a common dataset for the time-varying stratospheric aerosol surface area density (SAD) distribution. The models displayed differing degrees of sensitivity to aerosol levels, leading to different ozone losses. None of the models reproduced the observed hemispheric asymmetry in post Pinatubo ozone losses, for either full hemispheric means or for mid-latitudes [CCMVal, 2010]. Finally, regarding solar variability, the column ozone signal was reasonably well represented in models. Most models reproduced 70-80% of the observed solar signal in global column ozone (average between 60° S and 60° N) [CCMVal, 2010]. However, the vertical structure of the tropical solar signal in ozone did not seem to be correctly reproduced in models [Austin *et al.*, 2008].

The purpose of the present study is to assess how well CCMs are able to reproduce the effects of external forcings on stratospheric chemical composition but above measurement sites. Instead of using composite satellite data and a zonal mean representation, the evaluation uses homogenous long time series of observations from the NDACC (Network for the Detection of Atmospheric Composition Change) network. The NDACC data serve as reference measurements in the validation of satellite data. The evaluation cannot be zonal because the deviations from the zonal mean may play a very significant role in the variability above certain sites. The major limitation in NDACC data are the spatial sampling which is extremely sparse compared to satellite data. On the other hand, the NDACC database offers long time series, a relatively global distribution of sites (with tens of stations all over the globe) and simultaneous measurements of whole range of chemical species. Although the CCMVal program [Eyring *et al.*, 2006; CCMVal, 2010] did assess the performances of the models with respect to a range of chemical species, the evaluation was essentially climatological and the effects of external forcing on the variability of these species were not analysed. Our study focuses on the temporal variability. It considers NDACC long term measurements of ozone, reactive nitrogen species, chlorine species and methane. The seasonal cycle and other component of the variability of keys species in CCMs simulations are estimated and compared to results obtained with NDACC observations. To quantify the links between external forcings and variations in chemical compositions, a multi linear regression (MLR) analysis is performed. The external forcing considered in the MLR are QBO, ENSO, aerosol loading, solar irradiance and stratospheric halogen loading. For some species, stratospheric halogen loading is replaced by a linear trend term. Both CCM and observational records are processed in exactly the same way. Since the focus is on the evaluation of model response to external forcings, the only explanatory variables in the MLR are external forcings and not model variables such as atmospheric temperature, strength of the general circulation or heat flux. As a result, part of the internally generated variability in stratospheric chemical composition can certainly not be accounted for in the MLR. In addition, the response of a chemical species to an external forcing might involve complex and multi-step mechanisms and depend on responses of other variables, for

instance temperature. However, the aim here is not to explore how well models perform with respect to the mechanisms involved in the forcing-response links but simply to assess the overall links in model simulations and its consistency with the links in observations. It is also worth pointing out that, to our best knowledge, this study is the first attempt to analyse simultaneously large NDACC multi species datasets in the evaluation of CCMs.

The paper is divided into 5 sections. Section 4.2 describes the NDACC observations and the CCMs. The methodology and forcing proxies are presented in section 4.3. The results are described and discussed in sections 4.4. First, seasonal cycles are studied, followed by an analysis of the variance and of the MLR results. Section 4.5 is devoted to summary and concluding remarks.

4.2 Observations and model simulations

4.2.1 Observations

The evaluation of CCM responses to external forcings is carried out using different ground-based observational datasets. In contrast to most other studies, we first analyse model and observational data without zonal averaging, at the locations of NDACC measurement stations. The NDACC network is composed of monitoring and research stations providing high-quality observations of atmospheric chemical composition. The stations are well distributed over the globe. NDACC instruments are designed to provide consistent, standardized, long-term measurements of atmospheric trace gases, particles, UV radiation reaching the Earth's surface, and physical parameters. NDACC data are often used in the validation of satellite data. For the present evaluation of CCMs, we use O₃ and NO₂ columns measured with Systeme d'Analyse par Observations Zenithales (SAOZ) instruments [Pommereau and Goutail, 1988] and HCl, ClONO₂, CH₄, N₂O and HNO₃ columns from Fourier Transform Infra-Red (FT-IR) spectrometers [Zander *et al.*, 2008]. The quality of SAOZ data has been evaluated during several instruments intercomparisons [Hofmann *et al.*, 1994; Roscoe *et al.*, 1999; Hendrick *et al.*, 2011]. The FT-IR measurements have been validated by many instruments intercomparisons and comparisons with satellite observations [Lambert *et al.*, 2003; Griffith *et al.*, 2003; Dils *et al.*, 2006; Griesfeller *et al.*, 2006; Vigouroux *et al.*, 2008]. According to stations and species, the periods of observation are different, and are summarized in Table 6. For example, the longest time series is SAOZ measurement of NO₂ and O₃ columns during 17 years at Dumont d'Urville, whereas the shortest time series is FT-IR measurement of column CH₄ during 2 years at Wollongong. In average, the length of time series is 10 years. As the period considered and the length of the time series can have a significant impact on our results, the model-calculated and observational data are analysed in the same way over the periods covered (including data gaps) by the observations in order to make the results from models and observations as comparable as possible. The comparison between CCMs and daily observational data are carried out on monthly means. In contrast to other species, due to a strong diurnal cycle, the SAOZ sunset and sunrise NO₂ data are not averaged together, but treated as two distinct datasets; like the other species, their data are averaged monthly. As no

Station	Location	abbreviation	Instrument	Species	Period
Nyalesund	79° N-12° E	NYA	SAOZ	O ₃ , NO ₂	1991-2004
Scoresbysund	70° N-22° W	SCO	SAOZ SAOZ	O ₃ NO ₂	1994-2004 1992-2004
Kiruna	68° N-20° E	KIR	SAOZ FT-IR FT-IR	NO ₂ O ₃ , HCl, HNO ₃ CH ₄ , N ₂ O, ClONO ₂	1992-2004 1996-2004 1996-2004
Sodankyla	67° N-27° E	SOD	SAOZ	O ₃ , NO ₂	1990-2004
Zhigansk	67° N-123° E	ZHI	SAOZ SAOZ	O ₃ NO ₂	1994-2004 1992-2004
Harestua	60° N-11° E	HAR	SAOZ FT-IR FT-IR	NO ₂ O ₃ , HCl, HNO ₃ , CH ₄ N ₂ O, ClONO ₂	1995-2004 1995-2004 1995-2004
Zugspitz	47° N-11° E	ZUG	FT-IR	O ₃	1996-2004
Jungfrajoch	47° N-8° E	JUN	SAOZ SAOZ FT-IR	O ₃ NO ₂ HCl, HNO ₃ , ClONO ₂	1991-2004 1990-2004 1990-2004
Observatoire de Haute Provence	44° N-8° E	OHP	SAOZ SAOZ	O ₃ NO ₂	1992-2004 1993-2004
Moshiri	44° N-142° E	MOS	FT-IR FT-IR SAOZ	O ₃ , HNO ₃ , ClONO ₂ HCl NO ₂	1996-2001 1996-2004 1991-2004
Mauna Loa	20° N-156° W	MAU	FT-IR FT-IR SAOZ	O ₃ , HCl, HNO ₃ , N ₂ O CH ₄ NO ₂	1992-2001 1995-2001 1996-2004
Tarawa	1° N-173° E	TAR	SAOZ SAOZ	O ₃ NO ₂	1992-1999 1993-1999
La Réunion	22° S-56° E	REU	SAOZ	O ₃ , NO ₂	1994-2004
Bauru	22° S-49° W	BAU	SAOZ	O ₃ , NO ₂	1996-2004
Wollongong	34° S-151° E	WOL	FT-IR FT-IR	O ₃ , HCl, HNO ₃ , N ₂ O CH ₄	1995-2004 2003-2004
Lauder	45° S-170° E	LAU	FT-IR FT-IR FT-IR SAOZ	O ₃ HCl, HNO ₃ , ClONO ₂ CH ₄ , N ₂ O NO ₂	1994-2004 1991-2004 2001-2004 1981-2004
Kerguelen	49° S-70° E	KER	SAOZ	O ₃	1996-2004
Dumont d'Urville	67° S-140° E	DDU	SAOZ	O ₃ , NO ₂	1988-2004
Arrival Heights	78° S-167° E	ARR	SAOZ	NO ₂	1991-2004

Table 6. — Station used here, with location, abbreviation, instrument and period.

sunset and sunrise NO₂ data over specific sites are provided in the CCMVal SPARC, their values are calculated using global NO₂ fields from CCMs and a monthly mean ratio of NO₂ between sunset and sunrise for each site provided by the chemistry-transport model SLIMCAT (M. Chipperfield, personal communication).

4.2.2 Model Simulations

Chemistry-Climate Models	Institution	Reference
AMATRAC3	NOAA, Etats-Unis	<i>Austin and Wilson</i> [2006]
CAM3.5	NCAR, Etats-Unis	<i>Lamarque et al.</i> [2008]
CCSRNIES	NIES, Japon	<i>Akiyoshi et al.</i> [2009]
CMAM	Environemt Canada, Canada	<i>Scinocca et al.</i> [2008]
LMDz-REPOBUS	IPSL, France	<i>Jourdain et al.</i> [2008]
SOCOL	PMOD/WRC, Suisse	<i>Schraner et al.</i> [2008]
ULAQ	Université d'Aquila, Italie	<i>Pitari et al.</i> [2002]

Table 7. – Models used here, with institution and reference

Chemistry Climate Models	Atmospheric GCM	Horizontal Resolution, Levels, top of model	QBO	SST, Sea Ice	Solar variability	Direct radiatif effect (heating rate)
AMATRAC3	AM3	~200 km, L48 0.017 hPa	Yes	HadISST1	Yes	GISS data
CAM3.5	CAM	1.9°×2.5°, L26 3.5 hPa	Forced	HadISST1	Yes	No
CCSRNIES	CCSR/NIES AGCM 5.4g	T42, L34 0.012 hPa	Forced	HadISST1	Yes	GISS data
CMAM	AGCM3	T31, L71 0.00081 hPa	No	HadISST1	Yes	SAD data set
LMDz-REPOBUS	LMDz	2.5°×3.75°, L50 0.07 hPa	No	AMIP II	Yes	No
SOCOL	MAECHAN4	T30, L39 0.01 hPa	Forced	HadISST1	Yes	Mixture of differents sources
ULAQ	ULAQ-GCM	R6, L26 0.04 hPa	Forced	HadISST1	No	Volcanic injections of SO ₂ and interactive aerosol calculation

Table 8. – Models used here, with horizontal and vertical resolutions, pressure of top level, and some main parametrizations.

The primary data used in this study are model outputs from the SPARC CCMVal-2 program [Eyring et al., 2008; Morgenstern et al., 2010]. Within the framework of this program, CCMs have been used to simulate the past evolution of the stratosphere. The CCMVal-2 models are state-of-art chemistry-climate models designed to describe all the required stratospheric photochemistry, radiative and dynamical processes and their interactions. Since CCMVal-2 models and their forcings are already described elsewhere Eyring et al. [2008] ; Morgenstern et al. [2010], only some aspects are briefly

presented below. Based on the availability of the model outputs required for the analysis, seven models are considered here. The list of model and their references are given in table 7; along with their horizontal and vertical resolutions, the pressure of top level, and some main parametrizations in table 8. A detailed description of the different models is given in *Morgenstern et al.* [2010]. We mostly analyse the multi-model mean simulation, although, for the needs of specific analyses, models are sometimes divided into 3 subgroups according to the QBO description: models that internally generate the QBO, models with an externally forced QBO by relaxation of equatorial stratospheric zonal winds to observed wind profiles, and models that do not account for the QBO. The type of simulation analysed here is the so-called REF-B1 reference simulation which covers the 1960-2006 period [*Eyring et al.*, 2008]. This historical simulation covers the period 1960-2006 and generally includes all known anthropogenic and natural forcings. The temporal evolution of the surface mixing ratios of greenhouse gases (CO_2 , CH_4 and N_2O) in the models follows the scenario A1B of the Intergovernmental Panel on Climate Change [*IPCC et al.*, 2001]. The evolution of halogen Ozone Depleting Substances (ODS) (CFCs, HCFCs and halons) surface mixing ratios follows the standard scenario of *WMO* [2007]. The sea surface temperature (SSTs) are prescribed as monthly means following the global sea ice and sea surface temperature (HADISST1) dataset provided by the UK Met Office Hadley Center [*Rayner et al.*, 2006] except for the CCM LMDz-reprobus that uses AMIP II sea surface data [*Taylor et al.*, 2000]. The influence of the solar variability on photolysis and heating rates is parametrized according to the intensity of the 10.7 cm solar radiations [*Lean et al.*, 2005]. All models except ULAQ have implemented a spectrally resolved solar forcing in the simulation, both for radiation and for photolysis calculations. The three major volcanic eruptions (Angung in 1963, El Chichon 1982 and Mount Pinatubo in 1991) are taken into account by prescribing observed global distributions of aerosol surface area densities (SADs). The chapter 2 of *WMO* [2011] summarizes the various ways in which the set-up of some models may deviate from the REF-B1 conditions [*Eyring et al.*, 2008].

The outputs of CCM simulations uploaded from the CCMVal database are monthly mean fields. Throughout this study, we only analyse the mean of the results from 7 CCMs and its standard deviation. This multi model mean is noted MMM. It is worth keeping in mind that the model simulations are sampled in exactly the way as the observations in order to consider a model time series of the same length with the same gaps as in the observational time series.

4.3 Method

Multiple regression models have long been a standard tool of atmospheric sciences. In stratospheric sciences, they were used to quantify the amount of ozone losses of anthropogenic origin *WMO* [1999, 2007, 2011]. There have been several studies exploring the use of multiple regression models in analysing ozone column time series [*Hood and McCormack*, 1992; *Bodeker et al.*, 2001; *Reinsel et al.*, 2002; *Randel and Wu*, 2007]. A large number of explanatory variables (*i.e.* ozone forcing proxies) have been considered in order to account for temporal variations in the explained variable, also called dependent variable (*i.e.* ozone column). Two approaches have been explored: “data-mining” and

“process-oriented” described in *Wohlmann et al.* [2007]. The aim of the “data-mining” approach is to maximize the variance that can be explained with the MLR model by testing as many explanatory variables as possible in the MLR model [*Ziemke et al.*, 1997; *Mäder et al.*, 2007]. Sometimes, this results in considering proxies whose physical connection with the explained variable is not direct or obvious but this approach provides the best predictive variables with respect to the variance of the explained variable. The “process-oriented” approach defines a set of proxies based on physical *a priori* knowledge, each representing a particular process that may in principle influence the dependent variable but it may miss unknown processes. For instance, a “standard” MLR model for ozone monthly-mean time series would include explanatory variables such as QBO, solar cycle and halogen loading. In the last years, the number of explanatory variable tended to increase to have a picture of ozone variability as complete as possible in order to identify the physical mechanisms driving this variability and estimate trends of anthropogenic origin accurately, albeit within the limitations of linear regression approach. However, the focus of our study being the externally driven variability, the external variables of the MLR are limited to well-known external forcings (such as QBO, solar cycle, ENSO, aerosol and halogen loadings) and, as a result, a large part of the inter-annually generated variability, at least the internal component, cannot in any way be accounted for by our MLR analysis. In some studies of polar ozone variability, the MLR also includes atmospheric parameters such as temperature or heat fluxes into the stratosphere as explanatory variables [*Svendby and Dahlback*, 2004; *Brunner et al.*, 2006; *Dhomse et al.*, 2006; *Wohlmann et al.*, 2007; *Harris et al.*, 2008]. That way, some internal variability can be accounted for in the MLR. However, the use of both external forcings and of atmospheric variables that are partly driven by both external forcings and internal variability as explanatory variables makes it very difficult to disentangle forced and internal variability. For this reason, we do not include model prognostic variables in the MLR.

In the MLR approach, the column variations are assumed to be described as a sum of independent contributions following a linear model of the form:

$$Y(t) = \mu_i + \alpha_0 + \alpha_1 T(t) + \alpha_2 A(t) + \alpha_3 S(t) + \alpha_4 QBO(t) + \alpha_5 QBO'(t) + \alpha_6 ENSO(t) + \epsilon(t) \quad (E1)$$

where $Y(t)$ is the stratospheric column monthly mean at time t (in month), μ_i is the monthly average of the i th month of the year ($i = 1, 2, \dots, 12$) calculated over all the years of the time series. α_0 to α_6 are the model coefficients calculated using a standard linear least squares regression. $\epsilon(t)$ are the residuals. The coefficient α_0 is constant term. The regression equation includes a trend term $T(t)$ constructed using EESC (Equivalent Effective Stratospheric Chlorine) time series (Chapter 5 of [*WMO*, 2011]), inorganic chlorine loading or simply time as trend explanatory variables $T(t)$ for ozone, chlorine species and other species data respectively. The formulation of EESC is taken from the last WMO report [*WMO*, 2011] so that it accounts for the age-of-air spectrum and age-of-air dependent fractional release values [*Newman et al.*, 2007] and allows to represent the total inorganic chlorine (Cly) and bromine (Bry) in various regions of the stratosphere. $A(t)$ is the SADs obtained from the CCMVal project. The 1979-2004 monthly time series of zonal mean SADs has

been constructed from SAGE (Stratospheric Aerosol and Gas Experiment) I, SAGE II, SAM (Stratospheric Aerosol Measurement) II, and SME (Solar Mesosphere Explorer) instruments [Thomason and Peter, 2006]. $S(t)$ is the solar flux at 10.7 cm and is a common proxy for UV irradiance changes ([ftp : //ftp.ngdc.noaa.gov/STP/SOLAR_DATA/SOLAR_RADIO/FLUX/DAILYPLT.OBS](ftp://ftp.ngdc.noaa.gov/STP/SOLAR_DATA/SOLAR_RADIO/FLUX/DAILYPLT.OBS)). $QBO(t)$ is the equatorial zonal wind at the 30 hPa and the $QBO'(t)$ term has been constructed normal to the QBO proxy $QBO(t)$ by duplicating and shifting it in one month increment until the time integral of $QBO' \times QBO$ is close to zero. The use of two orthogonalised QBO proxy terms allows a phase lag between the evolutions of the dependent variable and of the QBO [Austin et al., 2008]. $ENSO(t)$ is the southern oscillation index for the El Niño-Southern Oscillation mode of climate variability taken as the global SST ENSO index. It is defined as the difference between the mean sea surface temperatures anomaly equatorward of 20° latitude (north and south) and the mean sea surface temperature poleward of 20° and it captures the low-frequency part of the El Niño-Southern Oscillation phenomenon ([http : //jisao.washington.edu/data/globalsstenso/](http://jisao.washington.edu/data/globalsstenso/)). The temporal variations of the different explanatory variables considered in the MLR (EESC, inorganic chlorine, SADs, solar flux, QBO and index ENSO) are shown in figure 33 over the period 1980 to 2004.

Uncertainties (σ_n) on regression coefficient, α_n (with n being the index of a specific forcing in E1), are calculated with a bootstrapping method [Efron and Tibshirani, 1993]. In our approach, we start by calculating a first set of regression coefficients by least-square fitting of the observational or model time series with function E1. Then the residuals (*i.e.* differences between the series and the fit) are randomly added to the fit in order to create new artificial time series. In order to make sure that the results do not depend on the number of the artificial time series, 10,000 new time series are created. It is possible to conserve the autocorrelation characteristics of the initial time series in the new artificial time series by picking up and adding groups of successive residuals to the fit instead of picking up single residuals randomly, with the length (*i.e.* number of successive residuals) of the groups related to the autocorrelation length of the series. We have tested the effect of varying the length of the groups (number of successive residuals per group) and have not found very significant differences in the regression results when the number of successive residuals per group was varied from 1 (no autocorrelation) to ten.

After having generated 10,000 new artificial time series, new sets of regression coefficients for equation E1 are then estimated by least-square-fitting to the new time series. Finally, mean values and standard deviations can then be calculated from these 10,000 sets of regression coefficients. This method ensures that the residuals are normally distributed (at the 95% confidence level) and there are no significant autocorrelation in the residuals (at the 95% confidence level).

We have compared errors (*i.e.* standard deviations) on regression coefficients derived using this bootstrap method with standard MLR errors calculated using an autocorrelation model of type AR1 [Tiao et al., 1990]. For our long time series, typically more than a decade, standard deviations derived with the bootstrap method are found to be in excellent agreement with MLR standard errors. However, for short time series, MLR standard errors are found to be unrealistic small in some cases because of the too limited size of the sample whereas errors calculated with the bootstrap method remain

reasonable, possibly because of the artificial increase in the size of the sample. This suggests that the bootstrap method can provide robust and reasonable estimations of errors on regression coefficients for the column time series.

The MLR approach relies on a number of hypotheses that may not be valid in some cases. The main limitation is the correlation between forcings, implying that the contributions from forcings in equation E1 are not independent. For example, the aliasing between the solar and aerosol terms is related to the fact that major eruptions for the last three decades occurred at the end of 11 years solar cycles. In addition, it is also possible that the relationship between the column abundance (explained variable) and a forcing is not linear. As a result, the relationship would not be fully characterised or, at least, it would be approximated by a linear relationship in a MLR. These possible deficiencies should be kept in mind when analysing the results. There is a final check to do once MLR analyses are performed. One needs to verify that a relationship exists to some degree between the explained variable (stratospheric chemical composition parameters) and the explanatory variables (external forcings). In our cases, a F-test has concluded to the existence of such a relationship at a 99% confidence level.

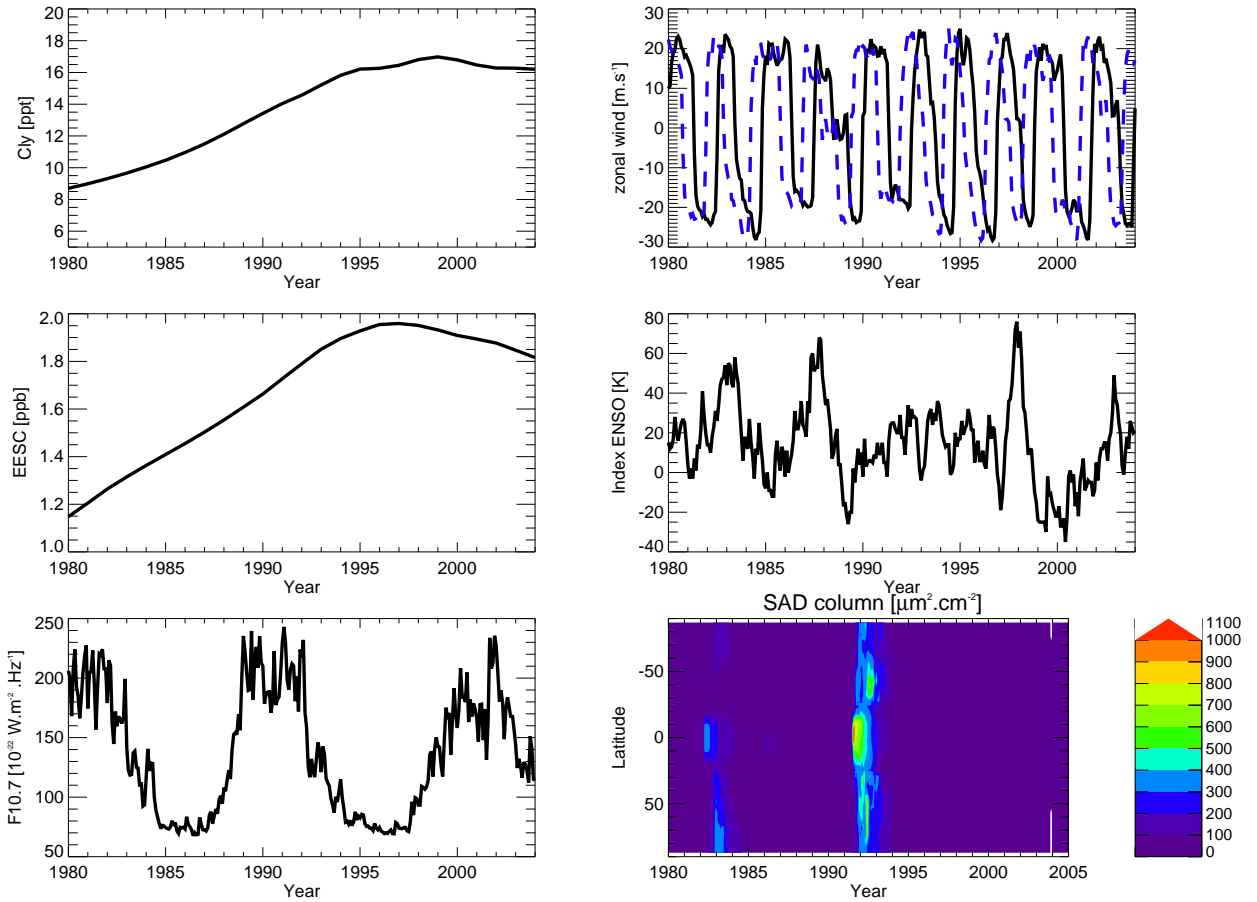


Figure 33. — Explanatory variables used in the statistical time series analysis. From top and bottom and left and right : inorganic chlorine in ppt, EESC in ppb, solar flux at 10.7 cm in $10^{-22} \text{ W.m}^{-2}.\text{Hz}^{-1}$, QBO (black) and QBO' (blue) in m.s^{-1} , index ENSO in K and SADs column in $\mu\text{m}^2.\text{cm}^{-2}$.

4.4 Results

Stratospheric chemical composition is known to vary in response to a number of external forcings such as the seasonal, the 11-year cycle in solar irradiance, the QBO, the ENSO, the aerosol loading, and a trend term related to variations in anthropogenic emissions of Ozone Depleting Substances (ODS). The goal here is to evaluate how well CCMs simulate the variability of stratospheric chemical species such as ozone, long-lived tracers (N_2O , CH_4), short-lived species (NO_2) and reservoirs species (HCl , ClONO_2 and HNO_3). The relative importance of different sources of variability in stratospheric chemical composition is assessed here. We first analyse the seasonal cycle, then the total versus deseasonalized variability and finally the forced variability estimated with MLR analyses.

4.4.1 Annual Cycle in Stratospheric Chemical Composition

4.4.1.1 Seasonal Cycle in Ozone

Annual variations in stratospheric ozone are caused by seasonal variations in transport and photochemistry. As total ozone is largely driven by the lower stratospheric partial column, its annual cycle is mainly affected by the ozone evolution in this altitude range. Variations in transport, driven by dynamical processes, can affect ozone either directly or also indirectly through changes in the transport of ozone-depleting substances. Photochemical production of ozone depends on annual variations in the solar irradiance. The resulting annual cycle in total ozone is characterized by low amounts in tropics year-round, maxima in the spring of Northern Hemisphere (NH) high latitudes and Southern Hemisphere (SH) middle latitudes. And globally, the hemispheric mean total ozone is larger in the NH than in the SH. Figure 34 shows the mean seasonal cycle of total ozone measured at six stations regrouped in three latitude bands (figure 34a and 34b at 67°N , figure 34c and 34d at 44°N and figure 34e and 34f at 22°S). The black and dashed red lines represent the mean seasonal cycle of the observations and the multiple models mean (MMM) respectively. The MMM is the average of seasonal cycles from CCMVal-2 individual model simulations. Standard deviations are indicated with a grey area for observations and with dotted red lines for the MMM. Overall, the MMM is able to reproduce the broad features of the observed annual cycle in column ozone in the northern hemisphere and in the tropics. Interestingly, models also appear to be able to reproduce correctly the strong deviations from the zonal mean as revealed by the NDACC observations. For example, let's consider stations at the same latitude band (OHP at 44°N - 6°E and Moshiri 44°N - 142°E or Sodankyla at 67°N - 27°E and Zhigansk at 67°N - 123°E) in Figure 34. The maximum observed at OHP is about 350 DU whereas it reaches 430 DU at Moshiri and the timings of the maximum and minimum of the annual cycle are shifted later in the year at OHP compared to Moshiri. These differences between stations in the same latitude band also exist between Sodankyla and Zhigansk stations in the 67°N latitude band and again models do reproduce them though they tend to underestimate the amplitude of these deviations from the zonal mean when compared to observations. As shown in figure 34a and 34b, the interannual variability (characterised with the standard deviation) at NH high latitudes is higher during winter.

This is due to the strong dynamical variability such as the rapidly changing position of the polar vortex brought about by the effect of wave activity that tends to deform the zonal flow. In contrast to high and middle latitudes, the seasonal cycles are very similar at the two tropical stations confirming that deviations from the zonal mean are small in the tropics (see figure 34e and 34f). The strong deviations from the zonal mean at middle and high latitudes demonstrate the importance of using 3-D fields in evaluating Chemistry Climate models against site observations.

4.4.1.2 Seasonal Cycle in Long-Lived Species CH₄ and N₂O

Indications on the global transport in the stratosphere can be obtained from analyses of stratospheric chemical tracers, namely long-lived chemical constituents, whose spatial distributions and annual cycle are largely controlled by transport. Two such constituents are methane (CH₄) and nitrogen oxide (N₂O). Although altitude-resolved tracers measurements provide very detailed information on the general stratospheric circulation, chemical tracers columns can at least indicate whether there is a major deficiency in the global transport of a model. The sources of CH₄ and N₂O are surface emissions that enter the stratosphere through the tropical tropopause. Once they enter the stratosphere, their concentrations start dropping due to oxidation for CH₄ and photodissociation for N₂O. Generally, the amplitude of the CH₄ and N₂O columns annual cycles is rather small (see figure 35). Nonetheless, minima are observed in autumn and winter, especially at NH high latitude stations (for instance Kiruna) followed by an increase in spring due to the cumulated effect of the downward transport inside polar vortex during the winter, and its breakup in spring with the mixing-in of mid-latitudes air. Models are generally better at reproducing the seasonal cycle in N₂O column than the seasonal cycle in CH₄ column whose amplitude is underestimated in models. There are no other salient deficiencies in terms of seasonal variability a part from this too flat seasonal cycle in CH₄ column. Overall, these comparisons suggest that CCMs have a reasonably good global circulation in the stratosphere. CCMs have a systematic bias in terms of absolute column abundance, they overestimate both columns by about 5%. It seems to be partly due to a small overestimation of tropospheric columns in models as pointed in the last SPARC CCMVal report [CCMVal, 2010], Indeed, in the REF-B1 scenario used by all CCMs, the same surface mixing ratios of CH₄ and N₂O are prescribed all over the globe, without taking into account the heterogeneities of the surface emissions distribution and hence of surface concentrations which are particularly significant for CH₄.

4.4.1.3 Seasonal Cycle in Nitrogen Oxide Species NO₂ and HNO₃

Nitrogen oxides are of primary important in controlling stratospheric O₃ levels. In the stratosphere, NO₂ originates mostly from the oxidation of N₂O in the middle stratosphere. In the middle stratosphere, reactions involving NO_x are the primary catalytic O₃ destruction cycle. In the lower stratosphere, NO_x moderates O₃ destruction by combining with hydrogen (HO_x) and halogen (ClO_x and BrO_x) radicals involved in catalytic O₃ destruction. The analysis of NO₂ is provided at sunset and sunrise, separately instead of a daily mean, due to the strong diurnal cycle of NO₂. The highest NO₂

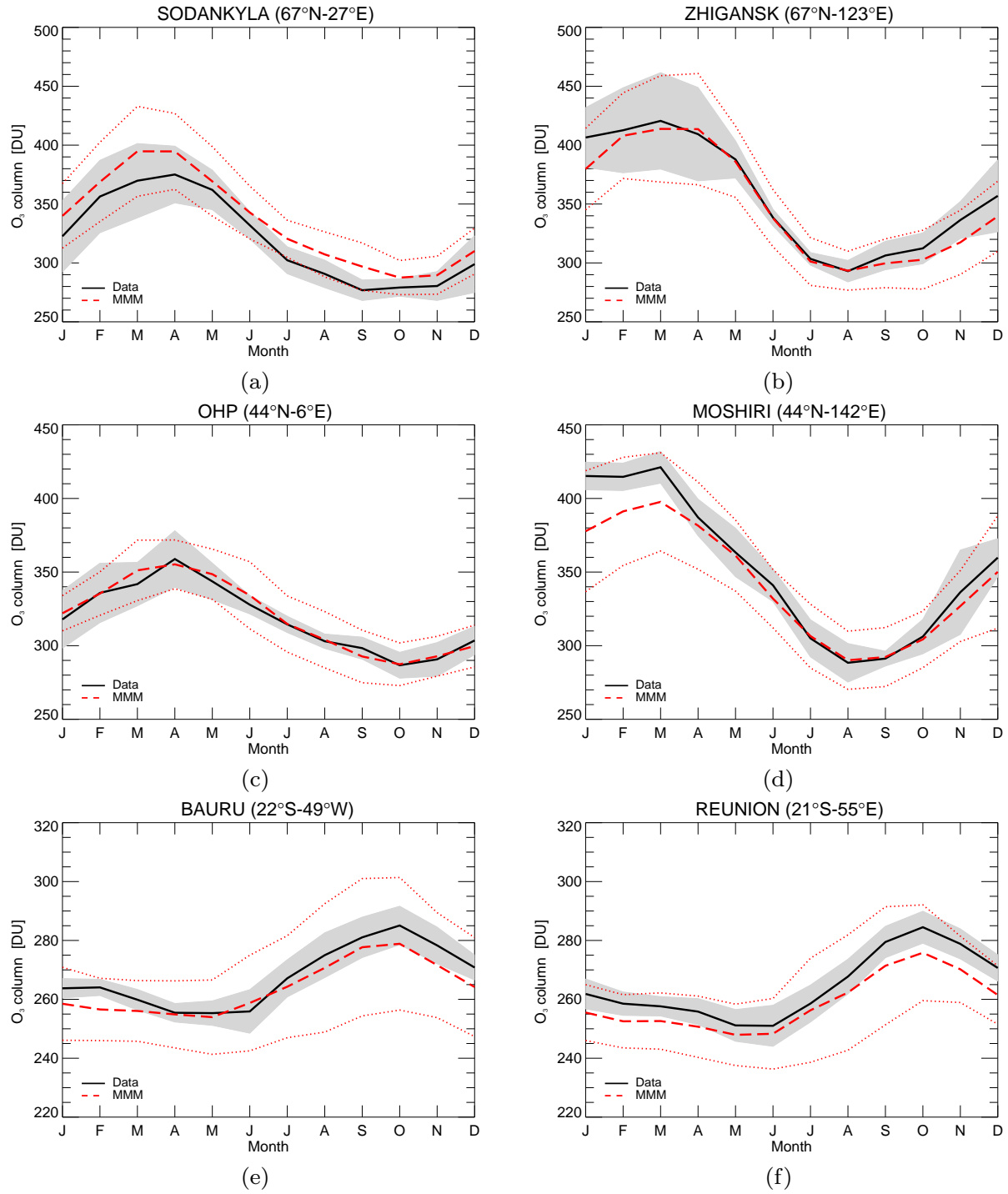


Figure 34. — Seasonal cycle of ozone column (DU) at 6 stations. The black and dashed red lines represent the mean seasonal cycle of the observations and the multiple models mean (MMM) respectively. The standard deviations are indicated with grey area for observations and dotted red line for the MMM.

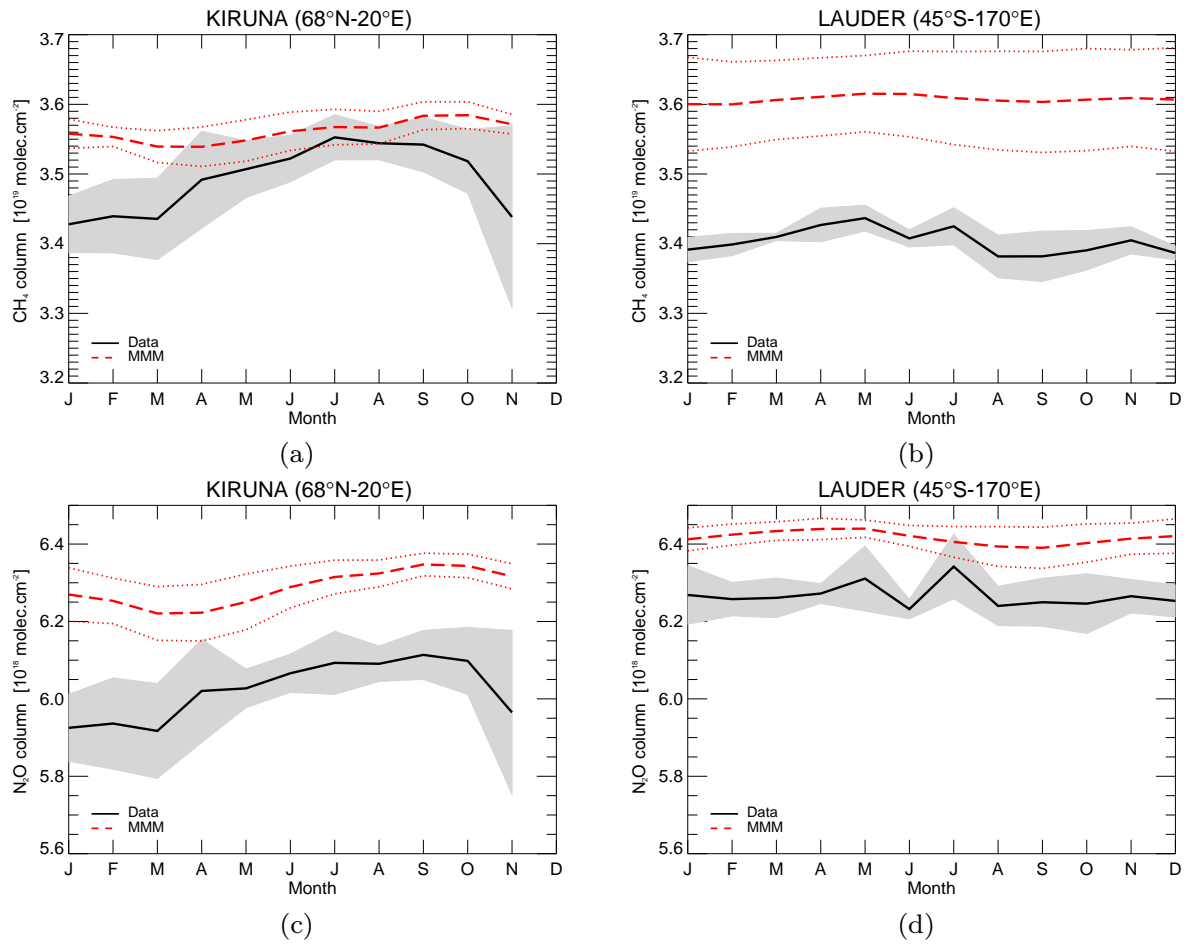


Figure 35. — Same as figure 34 but for CH_4 (10^{19} molec. cm^{-2}) and N_2O column (10^{18} molec. cm^{-2}) at 2 stations.

columns are found in polar region during summer because, under permanent sunlight conditions, the longer-lived reservoir species, N_2O_5 and HNO_3 , are almost entirely converted into NO_x . Inversely, the lowest columns are found in polar regions during the winter when the lack of sunlight, denoxification and denitrification by Polar Stratospheric Clouds (PSCs) result into to a sharp drop in NO_x [Noxon, 1979; Solomon, 1999]. NO_2 columns are lower in the tropics due to the fact that tropical air is relatively young, still rich in N_2O and so relatively poor in total reactive nitrogen NO_y ($=\text{NO}_x + 2\text{xN}_2\text{O}_5 + \text{HNO}_3 + \dots$). The conversion of N_2O into NO_y takes place during the transport toward the poles leading to increasing NO_y and NO_2 column outside the tropics. Figure 36 shows the examples of mean seasonal cycles of column NO_2 at sunrise for six NDACC stations, regrouped in 3 different latitudes bands (same as figure 34). Generally, CCMs reproduce well all the features of the seasonal cycles described previously. As for ozone, observations indicate longitudinal differences between summer maxima at two stations on the same latitude band. CCMs do not reproduce these deviations from zonal mean. Models reproduce well the amplitude of the NO_2 column maxima observed at Sodankyla, Moshiri and La Reunion but overestimate them at Zhigansk, OHP and Bauru. It may be noted that the rapid increase seen in modelled NO_2 columns in December at NH high latitudes originates from the use of a $\text{NO}_2(\text{sunrise})/\text{NO}_2$ ratio calculated by the SLIMCAT CTM in order to estimate sunrise and sunset values from daily mean NO_2 . Only daily mean NO_2 data are made available in the CCMVal database.

HNO_3 is the dominant form of reactive nitrogen in the atmosphere. It is an important reservoir species for NO_x in both the troposphere and stratosphere and as such is a key component for the understanding of the reactive nitrogen chemical processes and hence ozone destruction in the stratosphere [Solomon, 1999; Brasseur and Solomon, 2005]. It is also a major component of polar stratospheric clouds (PSC) that form in the polar lower stratosphere during winter. These clouds provide surfaces for chlorine activation (conversion of chlorine reservoir species into radical ozone-destroying species) and denitrification (permanent removal of reactive nitrogen by gravitational sedimentation of PSCs). Both processes are important factors in polar ozone destruction [Solomon, 1999; Santee et al., 1999, 2004; Jin et al., 2006]. A part from seasons and regions where PSCs form, HNO_3 generally increases from the tropics to the poles, where it shows a more pronounced seasonal cycle with high abundances in late fall/early winter and lower levels in summer. Figure 37 shows the mean seasonal cycle of HNO_3 for 2 stations located at middle latitudes in NH and SH. The general behaviour of the seasonal cycle seen in the observations is well reproduced by the CCMs even if models tend to overestimate the HNO_3 column at NH middle latitudes and slightly underestimate it in SH middle latitudes. There is a large spread in CCM results, already noted in comparisons with satellite data [CCMVal, 2010], reflecting partly the large spread in reactive nitrogen partitioning among CCMs.

4.4.1.4 Seasonal Cycle in Chlorine Reservoirs Species HCl , ClONO_2 and their sum

The accumulation of halogenated compounds in the stratosphere over the last half century has been the primary driver of stratospheric ozone depletion. HCl and ClONO_2 are the two major stratospheric chlorine reservoir species in the atmosphere. For both gases, the seasonal cycle of the total column

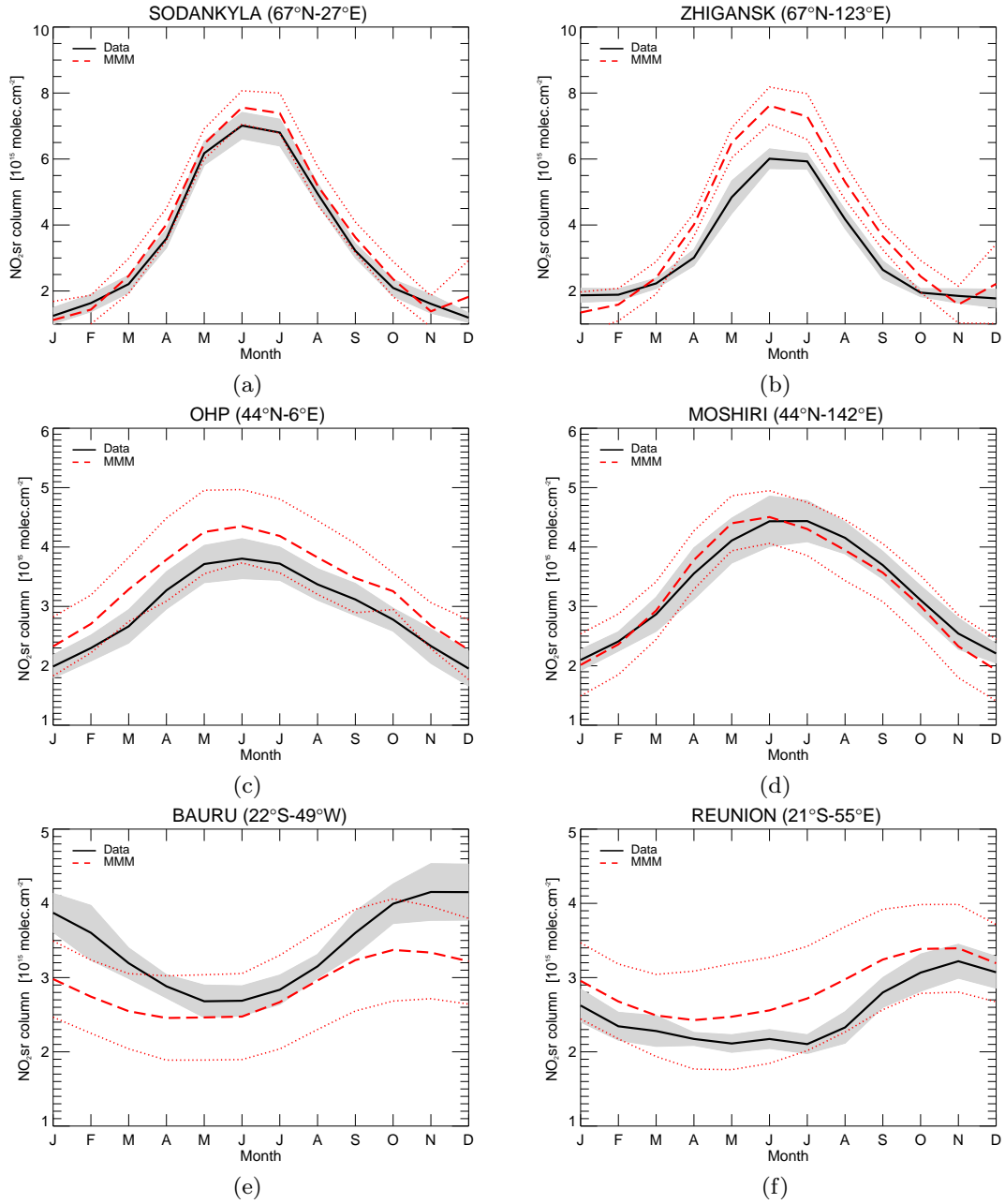


Figure 36. — Same as figure 34 but for but for sunrise NO_2 ($\text{NO}_{2\text{sr}}$) ($10^{15} \text{ molec.cm}^{-2}$) column at 6 stations.

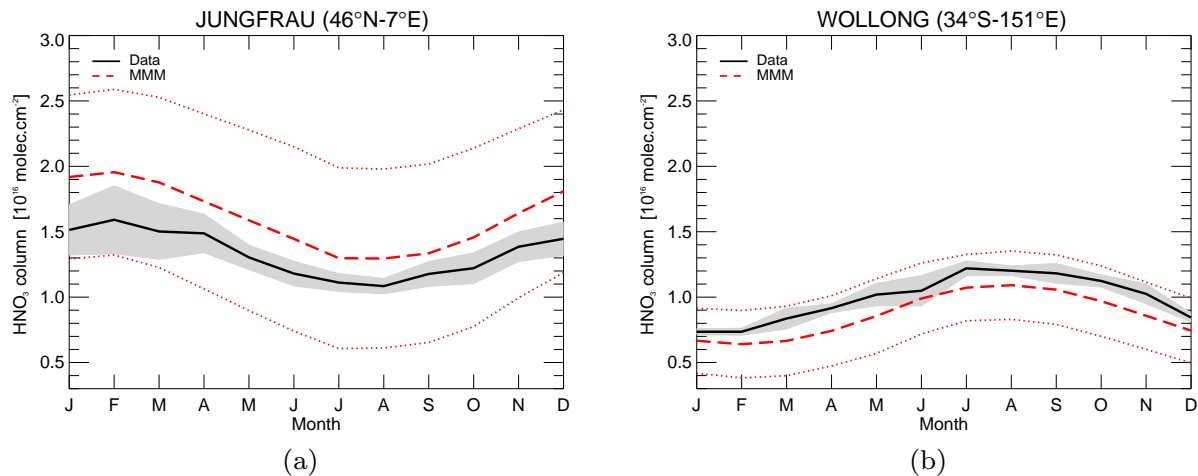


Figure 37. – Same as figure 34 but for HNO_3 column (10^{16} molec. cm^{-2}) at 2 stations.

abundance has been found to be connected with seasonal variation of tropopause height [Kohlhepp *et al.*, 2011]. This variation results from the stratospheric general circulation transporting air from the summer to the winter hemisphere. The higher the tropopause, the smaller is the relative contribution of the stratosphere to the total column abundance. This again contributes to lower total column of HCl and ClONO_2 in summer, because tropospheric columns of HCl and ClONO_2 are negligible compared to stratospheric columns. In the high latitude regions, HCl and ClONO_2 are in addition influenced by the absence of solar irradiance in winter. Chlorine activation on the surface of polar stratospheric clouds (PSCs) leads to a decrease in the total column abundances of the chlorine reservoir species and a strong peak at the end of the winter due to the deactivation of active chlorine (conversion back of chlorine radicals into reservoir species). As a result, the seasonal cycle is expected to exhibit its largest amplitude at polar sites. Figure 38 shows the seasonal cycle of HCl , ClONO_2 and $\text{HCl}+\text{ClONO}_2$ columns for two stations located in HN and HS mid-latitudes. HCl and ClONO_2 are by a long way the dominant species in the total chlorine family except in polar regions during the winter when chlorine activation on PSCs modify radically the chlorine partitioning. As shown in figure 38, the general shape of the seasonal cycle for both gases columns and their sum are well reproduce by CCMs. However, CCMs tend to overestimate and underestimate HCl and ClONO_2 column amounts respectively. In addition, for the same stations, we can note a time lag of about 1 month between maxima and minima. In contrast to both gases, the values of their sum ($\text{HCl}+\text{ClONO}_2$), a good proxy for total chlorine (Cl), appears to be very close to observations indicating that CCMs reproduce correctly the total chlorine seasonal cycle but tend to have a bias in the chlorine partitioning, overestimating the $\text{HCl}/\text{ClONO}_2$ ratio. This bias clearly points towards a major deficiency in chlorine chemistry in models.

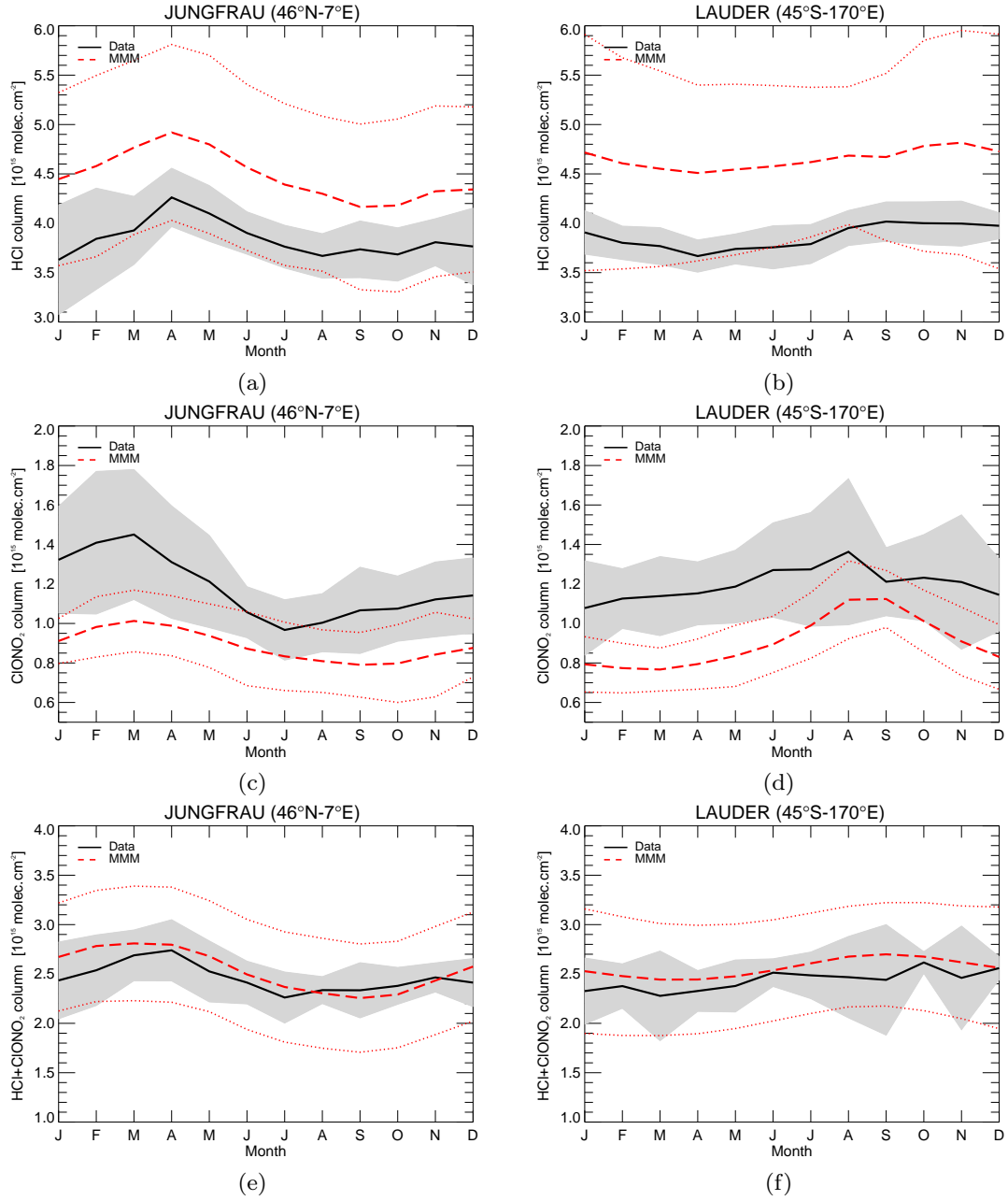


Figure 38. — Same as figure 34 but for HCl column (10^{15} molec.cm⁻²), ClONO₂ column (10^{15} molec.cm⁻²) and their sum (10^{15} molec.cm⁻²) at 2 stations.

4.4.2 Total and Interannual Variability of the Stratospheric Chemical Composition

While the overall variability is certainly dominated by the seasonal cycle, there is also a very substantial inter-annual variability in column time series. The issue here is to assess the ability of CCMs to reproduce the inter-annual variability observed at NDACC stations. We first start by comparing the variability in the observed and MMM raw time series by plotting the standard deviations for the observed column time series as a function of the corresponding standard deviations from CCM simulations at different stations and for all the species in the figure 39 to 42. These figures present the results not only for the total variance but also for the variance of the deseasonalized time series in order to characterise specifically the inter-annual variability since, on intra-annual scales, the only significant component is the seasonal one. In order to deseasonalize the time series, the mean seasonal cycle, defined as monthly means averaged over the corresponding months of the time series, is subtracted from the raw time series [Ziemke *et al.*, 1997; Staehelin *et al.*, 2001; Dhomse *et al.*, 2006]. The robustness of this deseasonalisation method has been tested by comparing the results with another widely applied deseasonalization method using multiple harmonics as a proxy for the seasonal cycle [Stolarski *et al.*, 1991; Brunner *et al.*, 2006; CCMVal, 2010]. These two methods give very similar results. We favour the “monthly mean” method for our time series because χ^2 tests for distributional adequacy indicate that the distributions of the raw and deseasonalized time series are distinct with confidence levels (exceeding of 99,90%) slightly higher in the case of the “monthly mean” deseasonalization than in the case of the “multiple harmonics” deseasonalization. Finally, figure 39 to 42 also present the standard deviation correlation plots from deseasonalized times series extracted from modelled zonal mean fields instead of modelled 3-D fields. The idea is to see whether the interannual variability is properly resolved in zonal mean fields or whether it is dependent on the longitude. Note that zonal mean fields from CCMs have been extensively validated against satellite observations [CCMVal, 2010]. Moreover, linear regression and 1-1 lines and the correlation coefficient are also indicated on the correlation plots.

4.4.2.1 Ozone Variability

Figure 39a shows a very good agreement between total standard deviations in column O_3 from observations and CCMs with values lying around the 1-1 line and a high correlation coefficient between the modelled and observed datasets ($R = 0.96$). We can distinguish three groups of stations depending on latitude and amplitude of the standard deviation. The stations at high latitudes present stronger variability than tropical stations except for the DDU station where the values of standard deviations are more typical of stations at mid-latitudes and, inversely, for the MOS station where standard deviations are more typical of high latitudes. After deseasonalisation (see figure 39b), the standard deviations are strongly reduced at all stations both for observations and CCMs, reflecting the importance of the seasonal cycle contribution to the total ozone variability. It may be noted that data points at the different stations remain grouped by latitudinal regions after the deseasonalisation indicating the latitudinal dependency of the column ozone inter-annual variability. One can also note that the stan-

dard deviation of the deseasonalized time series at MOS is of the same order of magnitude as at the mid-latitude stations. Overall, after deseasonalization, column ozone variances in observations and models are very similar and well correlated ($R=0.8$) even if the models tend to underestimate slightly the interannual variability, particularly at high latitudes. CCM column ozone variances in zonally averaged fields (figure 39c) are smaller than in the 3-D fields (figure 39b) and hence have stronger negative biases with respect to observed variance and a degraded correlation with observed variance.

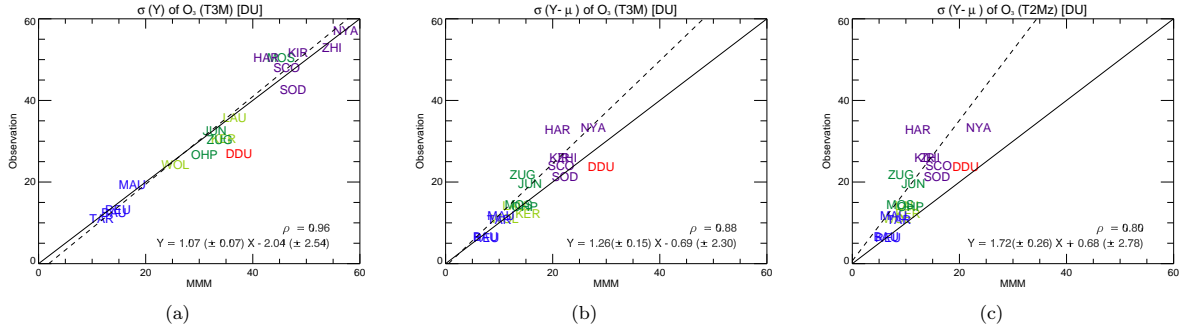


Figure 39. — Standard deviation from NDACC ozone column time series as a function of standard deviation from MMM ozone column time series; (a) MMM standard deviations from time series of columns reconstructed from 3-D CCMs outputs, (b) MMM standard deviations from deseasonalized time series of columns reconstructed from 3-D CCMs outputs and (c) standard deviation from deseasonalized time series of columns reconstructed from zonally averaged CCMs outputs. Color coding is red for SH high latitude stations, light green for SH middle latitude stations, deep green for NH middle latitude stations, purple for NH high latitude stations and blue for tropical stations.

4.4.2.2 CH₄ and N₂O Variability

The comparison of between observed and modelled standard deviations of raw time series is much worse for long-lived tracers such as CH₄ and N₂O (figure 40a and 40d) than for ozone. Correlation coefficients are only 0.5 and 0.78 for CH₄ and N₂O columns respectively. It is difficult to group the results according to values of standard deviation and latitude. Overall, the effect of deseasonalisation on the CH₄ column variance is very small due to the very weak amplitude of the CH₄ column seasonal cycle, especially in CCMs results (see section 4.4.1.2). CH₄ regression lines are shifted with respect to the 1-1 line and correlation coefficients are low for all the cases. After seasonal adjustment (see figure 40b and 40e), CCMs generally underestimate the inter-annual variability in column CH₄ except at two stations (LAU and ZUG) where the agreement with observations is very good. CCMs also underestimate the interannual variability of N₂O columns. As for CH₄ column, there is again a very good agreement with observations at ZUG. The results for zonal means (figure 40c and 40f) or 3-D fields (figure 40b and 40e) are similar allowing us to restrict the analysis of the long-lived tracer interannual variability to its zonal component.

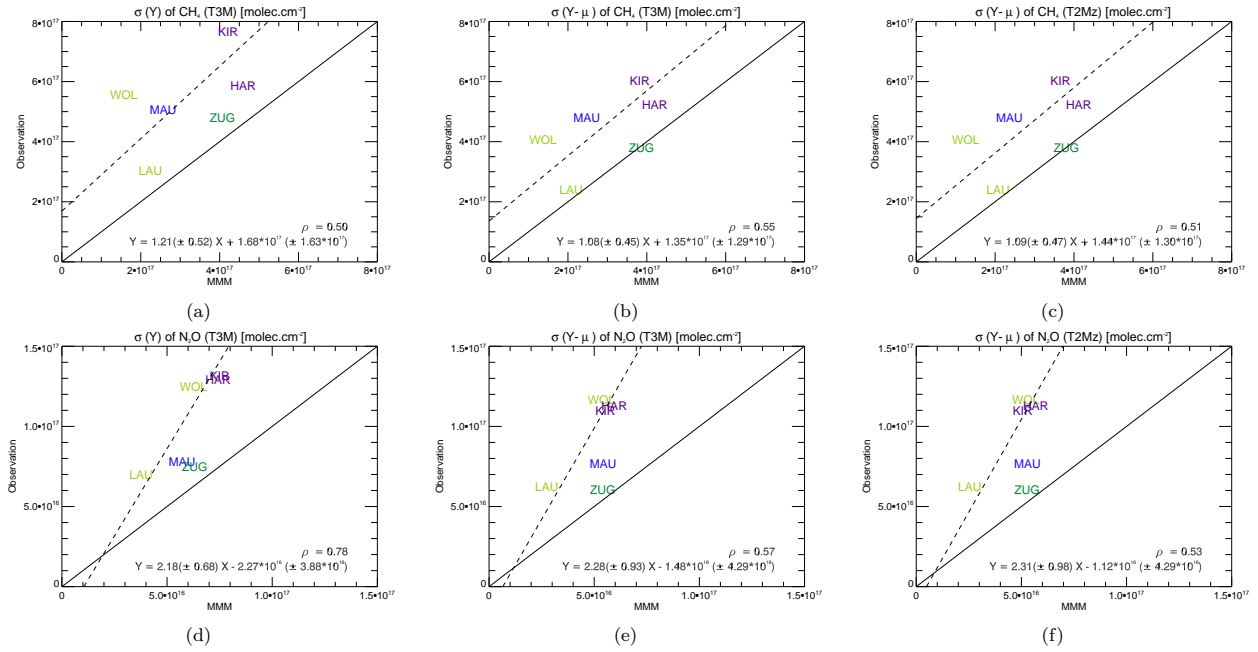


Figure 40. — Same as figure 39 but for CH_4 and N_2O column.

4.4.2.3 NO_2 and HNO_3 Variability

There is a rather good agreement between modelled and observed standard deviations for the raw sunrise NO_2 column series (figure 41a) with a correlation coefficient of 0.97. As for ozone column, the amplitude of the total variance varies with latitude and allows us to group together stations from the same latitude regions. In contrast to most other species analysed here, CCMs tend to overestimate the total variance of the NO_2 column especially at high latitude stations. It is also the case after deseasonalisation (figure 41b). This particular behaviour at high latitudes is certainly related to the use of CTM SLIMCAT $\text{NO}_{2\text{sr}}/\text{NO}_2$ ratio in estimating sunrise values from daily mean. It is very likely that the introduction of $\text{NO}_{2\text{sr}}/\text{NO}_2$ ratios calculated offline by a model analyses forced by meteorological into other models calculating their own dynamics and chemistry generates spurious variability, particularly in polar regions due to the specific polar winter chemistry and associated low NO_2 values. For instance, the interannual variability in dynamics is strong at NH high latitudes with very variable winter conditions that partly drive the reactive nitrogen partitioning. There is certainly no consistency between the polar winter conditions of the CTM and CCMs for specific years, generating spurious variability. Therefore, this one would expect No substantial difference can be found between results from 3-D fields and zonally averaged fields of CCMs (see figure 41b and 41c). This does not necessarily prove that the $\text{NO}_{2\text{sr}}$ column variance is independent of longitude. This could also indicate that the spurious variability discussed above is dominant and mask other sources of inter-annual variability. As the results for NO_2 column at sunset are identical results, they are not shown.

Like for NO_2 , there is a very good agreement between modelled and observed standard deviations for the raw HNO_3 column series with a correlation coefficient of 0.97 and a regression slope close to 1 (see figure 41d). The total variability in HNO_3 column is more pronounced at high latitude than at middle latitudes and tropics. The agreement between observations and CCMs remains good after seasonal adjustment. However, variances are very substantially reduced by deseasonalisation in both observational and CCMs, indicating that the seasonal cycle vastly dominates the total variability and that it is relatively well represented in CCMs (see figure 41e).

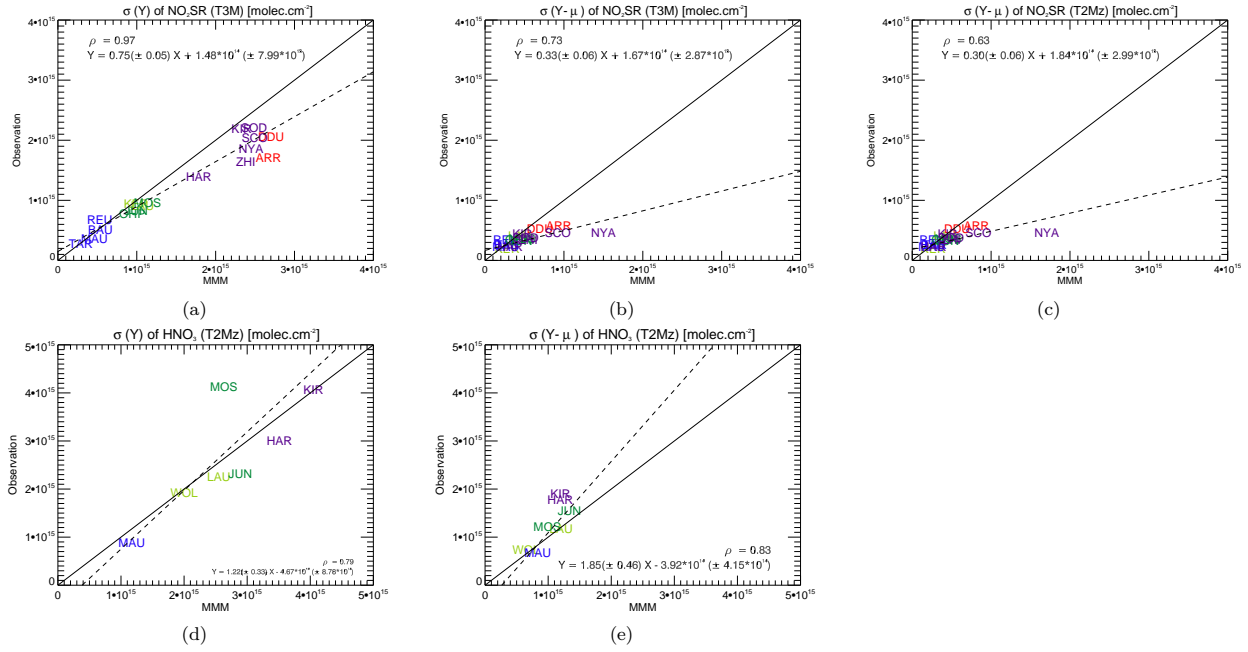


Figure 41. – Same as figure 39 but for NO_2sr and HNO_3 column.

4.4.2.4 HCl, ClONO_2 and their sum Variability

The correlation coefficient between observed and modelled total standard deviations in HCl column series is high (0.9) but the regression slope (1.58) shows that, on average, CCMs underestimate the HCl column total variance (see figure 42a). This variance is more pronounced at NH stations. There is the same general latitudinal dependency of the variance as found for other species with the total variance increasing from tropics to polar regions. The seasonal adjustment tends to reduce the variances but with a more pronounced impact on the modelled variability compared to the impact on observational variability; the correlation coefficient decreases to reach 0.62 indicating a stronger underestimation of the inter-annual variability by CCMs, especially at NH stations (see figure 42b). The use of zonally averaged CCM outputs fields tends to accentuate further this model bias and degrade the correlation with the observational inter-annual variability (see figure 42c).

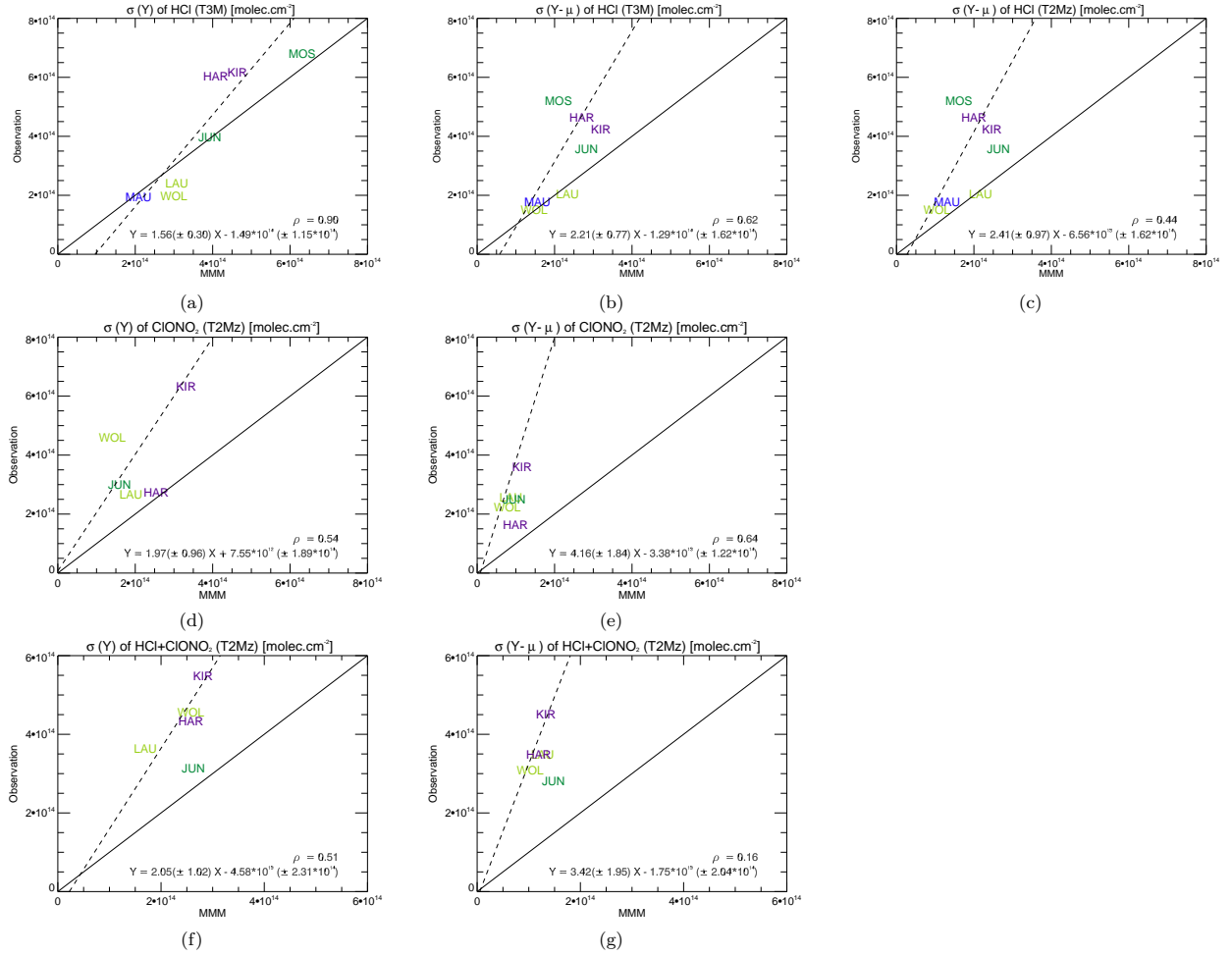
Concerning ClONO_2 column, the correlation between the standard deviations of observations and

CCMs time series is low (see figure 42d) and CCMs generally underestimate the total variability seen in the observations. The model bias is very pronounced at some stations such as KIR or WOL. After the seasonal adjustment (see figure 42e), the correlation coefficient tends to increase slightly because the large model biases found in the ClONO₂ column seasonal cycle are removed by the deseasonalization.

Regarding the sum of HCl and ClONO₂ column, a reasonable good proxy for total chlorine Cly, Figure 42f and 42g show substantial differences between observations and CCMs. As expected from the model underestimation of the variances of HCl and ClONO₂ columns, models also underestimate the variance of (HCl+ClONO₂) columns compared to observed variance and the correlation coefficient between modelled and observed standard deviations is only 0.51. After seasonal adjustment, the consistency between CCMs and observations variance is further degraded with a (HCl+ClONO₂) column inter-annual variability which appears to be largely underestimated by CCMs and with a very weak correlation (0.16). Overall, the inter-annual variability of chlorine species columns seems to be vastly underestimated in CCMs. In contrast, CCMs appear to be performing reasonably well in terms of climatologies of chlorine species climatologies [CCMVal, 2010].

4.4.3 Inter-annual Variability explained by external forcings

Section 4.4.2 has shown that CCMs tend to underestimate the inter-annual variability seen in ground-based observations. This model deficiency depends on the species and latitude considered. It is generally more pronounced for long-lived species and chlorine reservoirs species, and middle and polar stations. The only exception is NO₂ probably because of the spurious variability generated by the use of NO₂sr/NO₂ ratios from a CTM. The inter-annual variability can be decomposed in two main parts: externally forced variability and internal variability. The aim of the section is to assess the ability of CCMs to reproduce the different components of the inter-annual variability and, in particular, the contribution of individual external forcings to this variability. In order to estimate the forced variability and the different contributions of external forcing, we apply the MLR method described in detail in section 4.3 with five explanatory variables (trend, aerosol, solar, QBO and ENSO) to the deseasonalized time series for both observations and CCMs at all stations and species. The figure 43 to 46 show the R² parameter of the MLR which represents the ratio of the variance accounted for by the regression model to the total variance (i.e. inter-annual variability). A R² value equal to 1 indicates that the regression model can explain all the variance and, in contrast, a R² value equal to 0 indicates that the MLR model is not able to reproduce any variance. An intermediate R² value (0 < R² < 1) means the MLR model can explain the part of the variance that is linearly related to the MLR external forcings. The other part of the variance, the non-explained fraction, is thought to represent mostly the internal variability. It is very unlikely that some of this unexplained variance could be some forced variability driven by external factors that are not taken into account in the MLR because keys external forcing for the stratosphere have been identified. The fact that some hypotheses of the linear regression method may not be entirely valid can also affect the value of the R² ratio (i.e. linear relationship between forcings and atmospheric chemical composition, correlation


 Figure 42. — Same as figure 39 but for HCl, ClONO₂ and (HCl+ClONO₂) column.

between forcings,...). The fraction of the variance explained by individual forcings for observations and CCMs are plotted from figure 43 to 46 at different stations and for different species. In addition, the partitioning of this fraction between the different explanatory variables are presented in these figures as histograms (trend = yellow, solar = red, QBO = light blue, aerosol = dark blue, ENSO = green). To facilitate the reading, the components of R^2 for individual external forcings are represented as histograms in absolute values and negative contributions are shown in hatched.

4.4.3.1 Ozone Inter-Annual Variability

In the case of O_3 column (see figure 43a), the highest proportions of explained inter-annual variability (*i.e.* highest R^2) for both observations (R^2 values ranging 50 to 80%) and CCMs (R^2 values ranging 35 to 68%) are found in the tropical stations. At the other stations, the proportions are fairly similar in observations and CCM time series with R^2 of around 20-40%. The R^2 correlation plot indicate a correlation coefficient relatively high (0.78) and a slope of the regression line equal to 1.4 suggesting that CCMs tend to underestimate slightly the fraction explained by external forcings. As shown in figure 43b and 43c, the proportions of the variability explained by the trend forcing are dominant at DDU located in Southern Hemisphere polar region both in observations and CCMs due to the high dependency of the polar ozone loss to chlorine loading trend. At the other stations, the trend forcing represents only 10% of the inter-annual variability in CCMs which is in good agreement with observations. The solar forcing explains an important part of the variance at tropical stations, around 15% except at REU where the value is around 30%. In the tropics, UV radiation is intense all year around and its fluctuations can strongly influence O_3 photochemistry [Haigh, 1994]. In addition, the solar forcing appears to be very significant at NH polar stations (ZHI, SCO, NYA) where dynamical feedbacks are expected to play a role in driving the stratospheric response to solar forcing [Marchand *et al.*, 2011]. As expected, the QBO forcing explains a larger part (10-50%) of the interannual variability in tropics than in other regions (5-15%) in both observations and CCMs. The proportion of the inter-annual variability explained by the aerosol and ENSO forcings are relatively similar whatever the stations, except at JUN where the fraction explained by the aerosol forcing exceeds 40%. The time series of this station has the particularity to start in 1991 during the Mount Pinatubo eruption. For both observations and CCMs, the amount of variance explained by the aerosol forcing strongly depends on the period covered by the time series, whether it is a background (non-volcanic) or volcanically active period. The injection of sulphate particles from this eruption in September 1991 affected O_3 columns over all latitudes for a period of several years. The fraction is also very significant at OHP because the time series starts just two years after the eruption, while, at stations like ZUG and MOS, aerosol fractions are much smaller with the series beginning 4 years after the eruption [WMO, 1999]. Models generally tend to underestimate the aerosol contribution compared to observations.

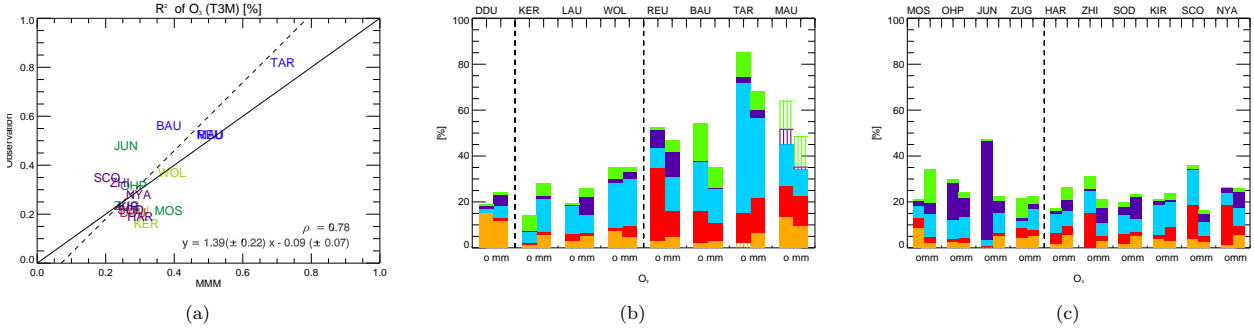


Figure 43. – (a) R^2 from NDACC ozone column time series as a function of R^2 from modelled ozone column time series; (b) and (c) contributions of individual external forcings to the ozone column total variance explained by the MLR model for different stations. Color coding is yellow for trend forcing, red for solar forcing, light blue for QBO forcing, dark blue for aerosol loading forcing and green for ENSO. The positive fraction of variance explained by explanatory variable is filled histogram and the negative fraction of variance explained by explanatory variable is hatched histogram.

4.4.3.2 CH_4 and N_2O Inter-Annual Variability

In the case of tracer species like CH_4 and N_2O , the R^2 results suggest that, whatever the stations, the inter-annual variability in CCMs results is almost completely explained by external forcings with R^2 values ranging from 80% to 96% (see figure 44a and 44c). In contrast, R^2 values for most observational time series range from 20 to 45% except in 2 stations where they reach 60 and 67% of the variance (see figure 44a and 44c). The correlation between modelled and observed R^2 is very poor and even negative for CH_4 . These results show that CCMs underestimate very substantially the internal variability for tracers species (CH_4 and N_2O). As expected, for both CH_4 and N_2O columns, the fraction of interannual variance explained by the trend forcing is the dominant contribution in CCMs whatever the stations. It is driven by the steady increase in CH_4 and N_2O emissions at the surface since early 20th century (see figure 44b and 44d). The most salient differences in the trend contribution between CCMs and observations are observed at NH mid and high latitudes where almost all the variability is forced in CCMs. The solar contribution for CH_4 column is relatively high, from 10 to 40%, at SH and tropical stations whereas the solar contribution is very low at NH stations both in CCMs and observations. In the case of N_2O column (seen figure 44d), the solar contribution is almost negligible everywhere both in observations and CCMs except at mid-latitudes stations though it is still fairly low. The QBO contribution in observations is generally higher than in CCMs except at mid-latitudes stations. The aerosol and ENSO contributions are broadly similar in observations and CCMs whatever the stations although CCMs tend to underestimate slightly compared to observations.

4.4.3.3 NO_2 and HNO_3 Inter-Annual Variability

In the case of NO_2 column at sunrise, the R^2 parameter ranges from 20% to 80% in CCMs and from 20% to 70% in the observations. The correlation coefficient between modelled and observed

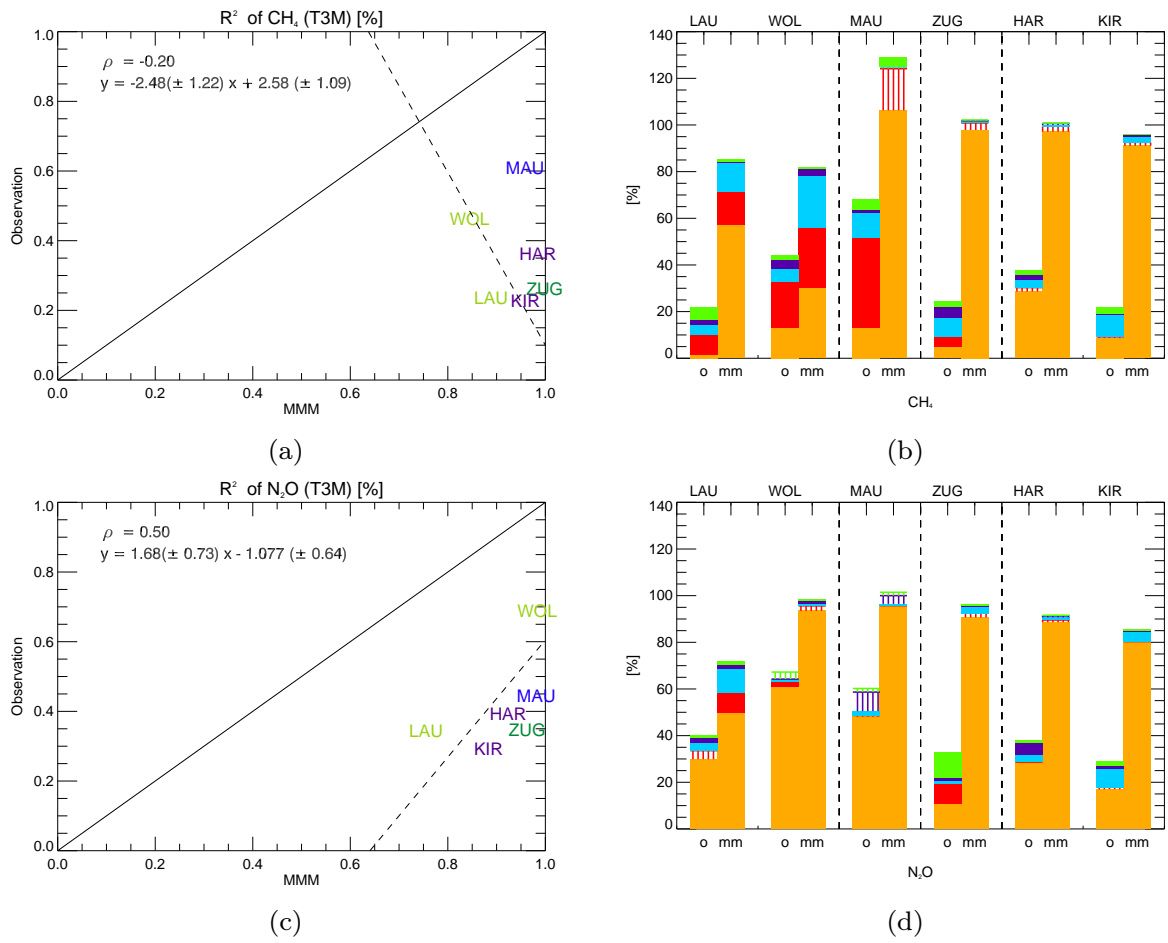


Figure 44. — Same as figure 43 but for CH_4 and N_2O column.

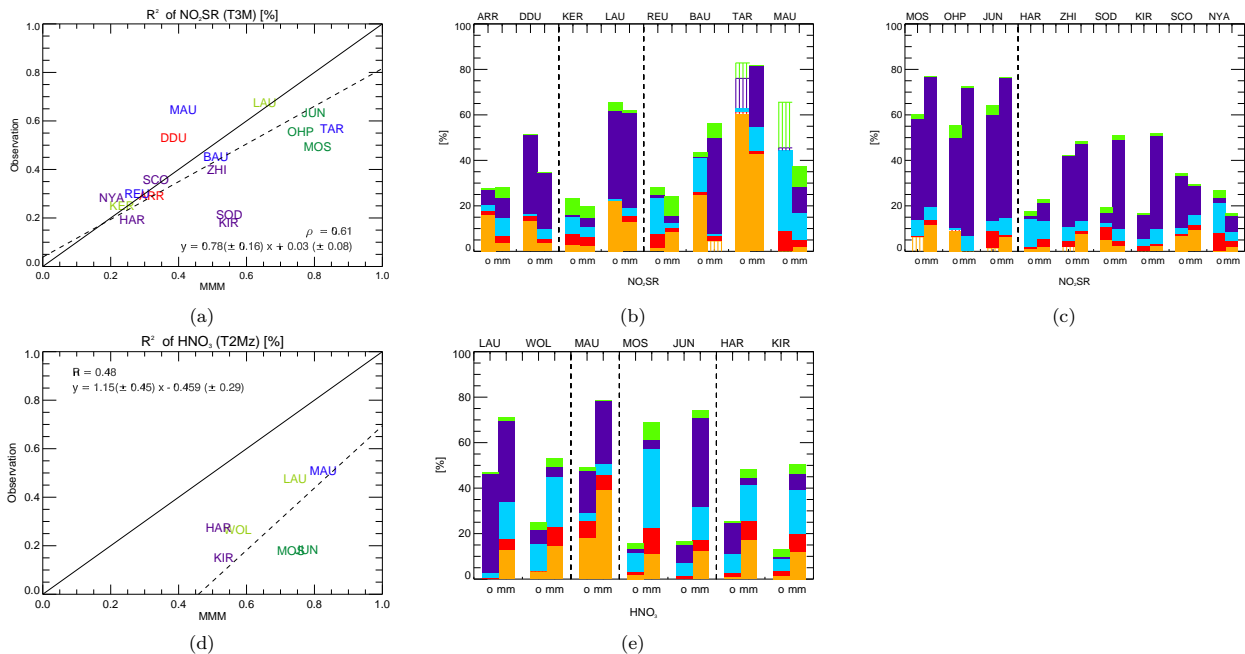
R^2 is relatively low (0.61) with a regression slope of 0.78 (see figure 45a). Overall, CCMs tend to overestimate the contribution of the external forcing to the total inter-annual variability compared to the observations, especially at NH stations, and it is generally due to an overestimation of the NO_2 column response to the aerosol forcing (see figure 45b and 45c). The trend forcing is responsible for 5 to 60% of the variance of the NO_2 column at SH stations and is found to be higher in observations than in CCMs whereas the trend contribution reaches 10% only at NH stations. The solar contribution is extremely low in both observations and CCMs. The QBO contribution is similar at most stations in both observations and CCMs except at tropical stations where the observed QBO contributions are found to be larger. For most stations, the dominant contribution to the inter-annual variability is the aerosol forcing, except at TAR station where the dominant contribution is the trend. Indeed, the sulphate aerosol influences NO_2 column due to well-known denoxification processes via heterogeneous chemistry. The massive eruption of Mount Pinatubo in 1991 led to an increase of the aerosol loading by 2 orders of magnitude resulting in highly enhanced aerosol surface areas and hence in heterogeneous chemical processing in the stratosphere until at least the mid-1990s [Fish *et al.*, 2000]. The aerosol contribution varies with the period covered by the time series. The aerosol contribution is smaller at HAR, MAU, REU, BAU and KER station where time series start after 1991. It may be noted that the same results and behaviour have been found in the analysis of NO_2 column at sunset (not shown).

The proportion of inter-annual variability of HNO_3 column explained by external forcing are generally overestimated in CCMs compared to observations whatever the station (see figure 45d). R^2 ranges from 50% to 80% in CCMs while it ranges from 15% to 50% in the observations. When we analyse the contributions of external forcing, it is difficult to attribute these overestimations to a specific external forcing (see figure 45e). The contributions of all external forcing are overestimated by CCMs whatever the station. The trend contribution is higher at tropical stations (reaching 40% in CCMs and around 20% in observations) and the solar contribution is almost negligible in observations but represents around 10% in CCMs. The aerosol contribution is usually dominant. As for NO_2 , heterogeneous chemistry on aerosol loading is an important process in the variability of HNO_3 . The HNO_3 response to aerosol forcing is particularly strong at JUN, LAU, and MAU stations where time series begin in the early 90s when the effect of the eruption of Mount Pinatubo is still noticeable.

4.4.3.4 HCl, ClONO_2 and their sum Inter-Annual Variability

For both HCl and ClONO_2 column, the proportion of inter-annual variability explained by external forcing is generally overestimated in CCMs compared to observations with a mean R^2 bias of around 12% for HCl and 18% for ClONO_2 (see figure 46a and 46c). Generally, the R^2 values are lower at high latitude stations compared to middle and low latitude stations both in observations and CCMs. In the case of HCl, the longest-lived chlorine species and the main reservoir, the trend contribution clearly dominates the variance, except at polar stations where the QBO contribution becomes dominant. The solar contribution is relatively small (around 5%) for all stations both in observations and CCMs.

The figure 46b present a more balanced distribution of forcing contributions (trend, QBO, aerosol) at all stations with an aerosol contribution higher than for HCl, especially in middle latitudes. The


 Figure 45. — Same as figure 43 but for NO_2sr and HNO_3 column.

solar contribution to HCl column variance is about 2 to 5% in CCMs and lower than 2% in observations. In the case of ClONO_2 , the trend contribution is not anymore dominant in the variance. For the sum ($\text{HCl} + \text{ClONO}_2$), a proxy of total inorganic chlorine, R^2 values are generally overestimated in CCMs with values ranging from 50% to 80% while values in observations range values from 10% to 40% (see figure 46e). Again, like for tracer species like CH_4 and N_2O , most of the inter-annual variability in CCMs is generally explained by external forcings, especially at tropical and mid-latitude stations. The contributions of different forcings to the total ($\text{HCl} + \text{ClONO}_2$) column variance are very similar to the ones found for HCl column with a dominance of the trend except in polar region and at JUN station where the QBO plays also an important role (see figure 46f). The overestimation of R^2 in CCMs compared to observations mostly originates from an overestimated trend contribution at LAU and MOS stations and from an overestimated QBO contribution at JUN and polar stations. The solar contribution for $\text{HCl} + \text{ClONO}_2$ is similar to the proportion found for HCl or ClONO_2 columns and represents barely 2% of the inter-annual variability of the observations.

4.4.4 Absolute contributions of external forcings to interannual variability

In this section, instead of looking at the relative contributions of individual forcing to the total forced variability, we now analyse them in absolute terms by converting the fraction of variance explained by a specific forcing into an absolute values such as the percentage change in a chemical species column

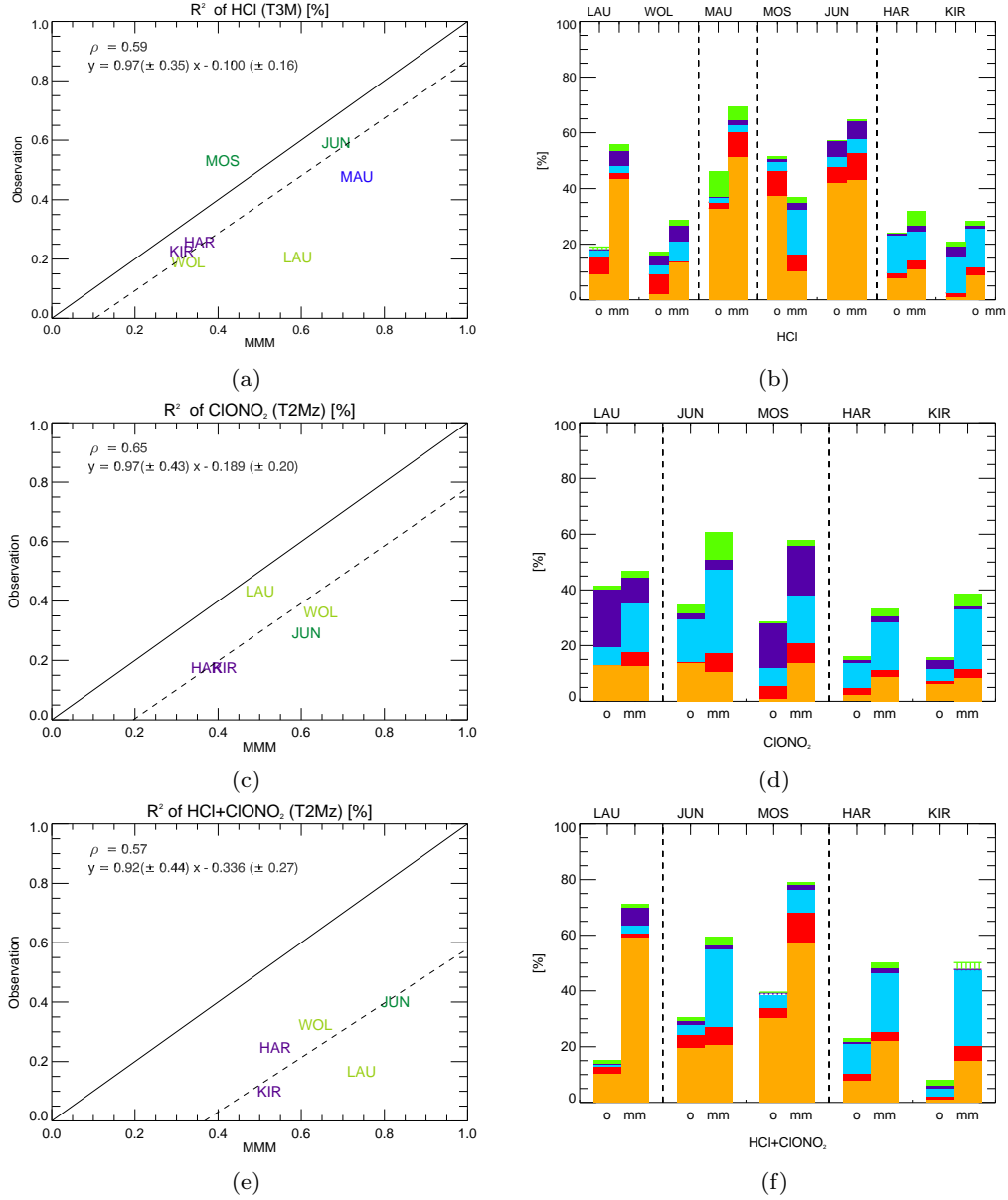


Figure 46. — Same as figure 43 but for HCl, ClONO₂ and (HCl+ClONO₂) column.

per unit change of a forcing indicator. This allows us to compare directly all the forcing contributions whatever the total variance in the time series or amount of variance explained by the MLR model. We attempt here to assess the ability of CCMs to reproduce the magnitude of the response of stratospheric chemical composition to individual external forcings. Figure 47, figure 49 and figure 50 show the magnitudes of responses to the main external forcings at the different stations and for O₃, CH₄, N₂O, NO₂sr and HCl total columns. The sensitivity to the external forcings is derived from the results of the MLR as described in section 4.3 over the period covered by the time series of the observations. In these figures, the response is calculated by multiplying the regression coefficient corresponding to the *j*th external forcing by its typical amplitude of variations over the considered period. These values are then normalised by the average column of the chemical species over the period in order to express the sensitivity (or response) to a specific forcing as a column percentage change per a typical variation in a specific external forcing with the variations expressed in the forcing units.

4.4.4.1 Total Ozone sensitivity to external forcings

In the figure 47a and 47b, the total ozone trends are expressed as a percentage of total ozone change for 0.5 ppbv EESC change. CCMs reproduce generally well the latitude dependency of the total ozone column trend derived from the observed ozone time series. The total ozone trends are negative at middle (-5 to -10% per 0.5 ppbv EESC) and high latitudes (-10 to -15% per 0.5 ppbv EESC) and even more pronounced at the Antarctic station DDU. Trends in Arctic ozone are much more difficult to estimate due to the strong year-to-year variability in meteorological conditions. Generally, when total ozone trends from CCMs markedly differ from the observed trends, the total ozone trends are found to be not statistically significant either in the observations or in the CCMs or even both. Although CCMs reproduce the broad features seen in the observations, column ozone appears to be more sensitive to chlorine and bromine loading (EESC) in the observations than in CCMs. In the tropics, both CCMs and observations show a positive trend, possibly partly related to solar activity with relatively low tropical column ozone abundances in the mid-1990s and relatively high values at the beginning of the 2000s during the recent solar activity maximum. It illustrates how a slowly varying forcing combined with too short time series may appear as a trend. While CCMs and observed trends agree at the tropical station TAR, the ozone column in the observational time series appears to be nearly twice as sensitive to EESC as it is in the CCMs at the MAU station. These results in the tropics differ from the analyses provided over much longer ozone time series in *WMO* [2011] where it was found that past tropical total ozone trends were negative in CCMs whereas observations were showing no statistically significant trend. This has raised the question of whether the discrepancy in the tropics could be due to increased tropospheric ozone, but no conclusive evidence could be found for a tropospheric ozone trend large enough to explain the difference between simulated and observed tropical trends in total column ozone. This apparent discrepancy remains unresolved.

The 11-year solar cycle has a clear and direct impact on tropical ozone through radiative and chemical processes in the upper stratosphere and through less direct and more complex mechanisms involving dynamics, transport and/or chemistry throughout the stratosphere (*e.g.* review by *Gray*

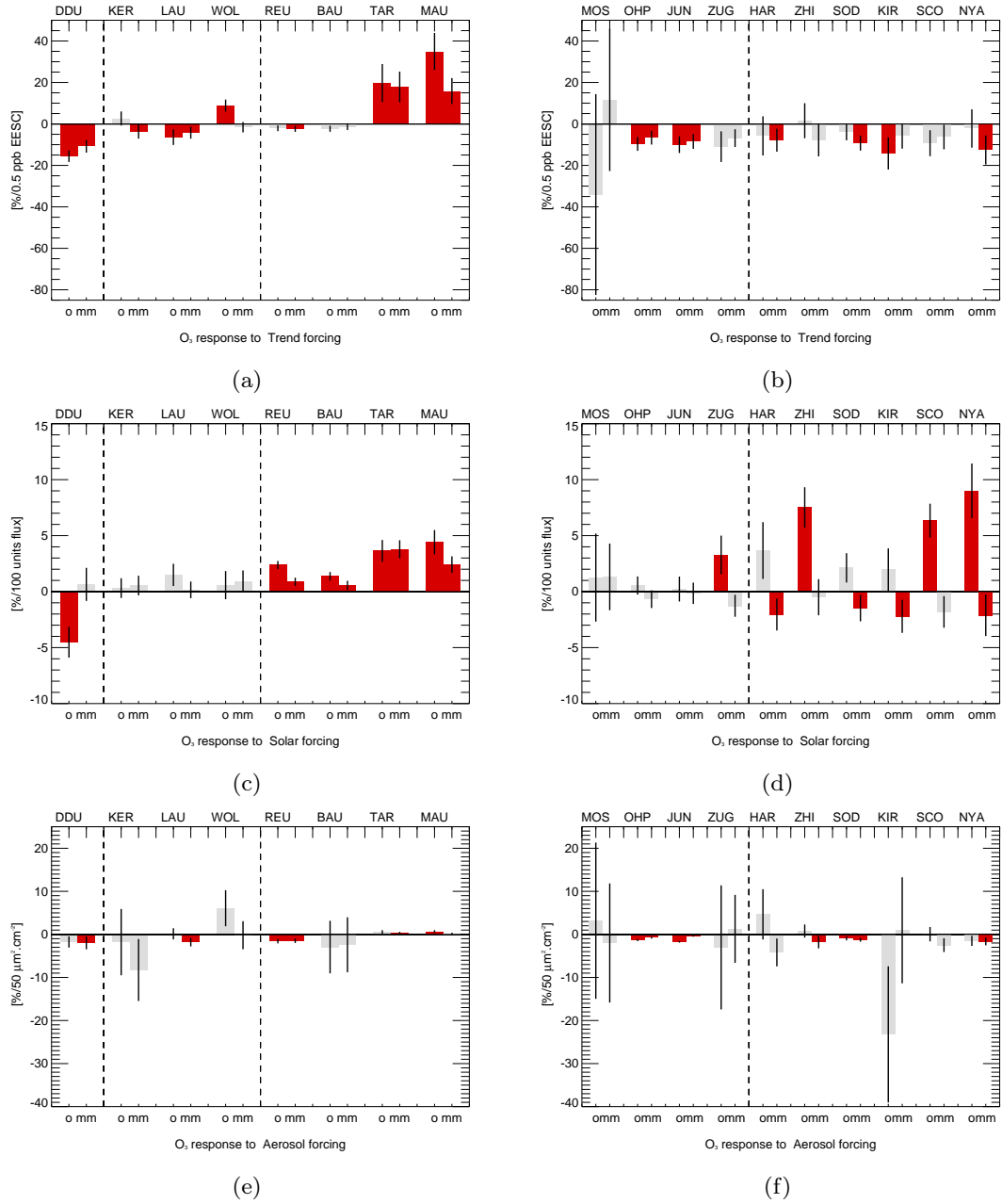


Figure 47. – (a) and (b) Ozone column trend expressed as percentage change in ozone column per 0.5 ppbv change in EESC; (c) and (d) Ozone column sensitivity to the solar forcing expressed as percentage change in ozone column per change of 100 units of $F_{10.7}$ flux; (e) and (f) Ozone column sensitivity to the aerosol forcing expressed as percentage change in ozone column per change of $50 \mu\text{m}^2 \cdot \text{cm}^{-2}$ in surface aerosol density column. Observed (O) and multi-model modelled mean (MMM) results are next to each other for each station. Red indicates statistically significant results whereas grey indicates results that are not statistically significant. The errors are indicated with the vertical bars.

et al. [2010]). The ozone response to solar variability in a CCM depends on the model representations of the relevant solar-driven processes (radiative transfer and photochemistry parametrisation) but also of dynamics representation in the tropical lower stratosphere and extra-tropical stratosphere. In figure 47c and 47d, the sensitivity of total ozone column to a variation of 100 units solar flux show a clear positive statistically significant signature in tropics in both CCMs and observations. The tropical total ozone response to solar variations is around 1.5-4.5% per 100 units solar flux in the observations and 1-4% in CCMs. The sensitivity to solar variations is not statistically significant at almost all the middle latitudes stations in both CCMs and observations. In polar regions, the total ozone sensitivities to solar variations in CCMs and observations are of opposite sign. Our results shown here can be compared with other MLR results also obtained with ground based data and CCM simulations (*Austin et al.* [2008]), although the use of different periods leads to some differences in the retrieved solar signal which will be discussed later. In this study (*Austin et al.* [2008]), analysing both observations and CCMs, the sensitivity to the solar forcing was found to be about 1-2% of the annual mean column ozone per 100 units of F10.7 flux in the tropics where the errors were the smallest and the response was statistically significant. These findings are consistent with our results. Away from the tropics, the errors were found to be larger and there were large differences between CCMs.

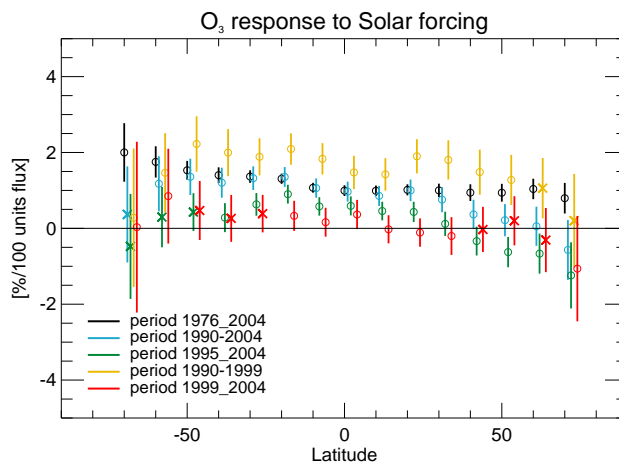


Figure 48. — Multi-model mean O_3 column sensitivity to solar forcing expressed as O_3 column % change per 100 unit flux change as a function of latitude for different periods. The periods of CCM simulations considered for MLR analysis are: 1976-2004 (black), 1990-2004 (blue), 1990-1999 (yellow), 1995-2004 (green), and 1999-2004 (red). Vertical bars denote the errors on regression coefficients. Circles indicate the statistically significant coefficients and the crosses are for statistically non-significant coefficients.

In order to investigate the effect of the length of the time series and of the specific time period considered on the MLR results regarding the solar forcing, we perform a sensitivity study with the long CCMs time series. The results are presented in figure 48. The modelled sensitivity to solar forcing is plotted as a function of latitude for different periods over the last 30 years. As expected, when the length of the time series is reduced, solar coefficients become less statistically significant and with larger errors, especially in extra-tropical regions. When different periods and lengths are compared, we find large differences in the solar signals. For instance, the sensitivity to solar variations is relatively high

for the 1990-1999 period and all the values are positive and increasing toward the poles. In contrast, the solar signal for the 1999-2004 period is found to be less pronounced between 50° N- 50° S than the signal for the other period and it is negative and not statistically significant at high latitudes. The main reason for these variations in ozone column sensitivity is likely to be aliasing, the fact that forcing indicators that are supposed to be independent in MLR could be somewhat correlated depending on the considered period. For example, the aliasing between the aerosol and solar forcings has already been established (*Solomon et al.* [1996]). In addition, there can also be aliasing between the trend and solar forcing. For instance, when the periods considered covered only one or two 11-year solar cycles, as it is the case here, the fact of starting and ending the time series at different phases of the solar cycle (minimum versus maximum) may result into some of the ozone response to solar forcing appearing as a trend in the MLR. It is likely that only MLR analysis on time series of at least several decades can provide robust and reliable estimates of ozone column sensitivities to solar variations for monthly mean data, especially at high latitudes. If daily data have been considered, a solar signal could have been extracted from much shorter time series because of an important periodicity in the solar activity, the 27-day solar rotational cycle.

Volcanic induced ozone changes are related to the effect of Volcanic aerosols impact on stratospheric chemical composition through heterogeneous chemistry and their interactions with solar radiation that result in changes in actinic fluxes, temperature and transport. Total ozone sensitivity to aerosol changes are plotted in figure 47e and 47f. The results are not statistically significant at several stations. Therefore we only analyse a limited number of stations where the results are statistically significant in both observations and CCMs (REU, OHP, JUN, SOD). At these stations, modelled total ozone responses to an increase in the surface aerosol density column of $50 \mu\text{m}^2.\text{cm}^{-2}$ are negative and range from 1 to 2%. These modelled values are in relatively good agreement with results for observations at REU station but they are smaller than the values derived from observations at mid-latitudes stations (OHP, JUN).

Column ozone sensitivities to the QBO forcing for observations and CCMs are presented in figure 49. Model results are shown on different plots according to the model QBO characteristics. Results are provided for all the CCMs (seen figure 49a and 49b), for CCMs with internally generated QBO (seen figure 49c and 49d), for CCMs with a forced QBO (seen figure 49e and 49f) and finally for CCMs without a QBO (figure 49g and 49h). Indeed, CCMs have difficulties in spontaneously simulating the QBO due to the challenging representation of a realistic spectrum of upward propagating waves in the tropics. The ozone column response to the QBO for all CCMs shows a statistically significant maximum at the equator and minima in the subtropics. It is somewhat consistent with results obtained with observations and also with an analysis of CCM simulations within the framework of the WMO report [WMO, 2011] and CCMVal project [CCMVal, 2010]. Poleward of 20° latitude, in both hemispheres, the agreement is generally degraded and accompanied with an increase in MLR errors and in the spread in CCM results [WMO, 2011]. The differences between the “all CCMs” case and observations results are the most pronounced at SH mid-latitude and at NH high latitude stations. However, the results are improved when only CCMs with an internally generated or forced QBO are

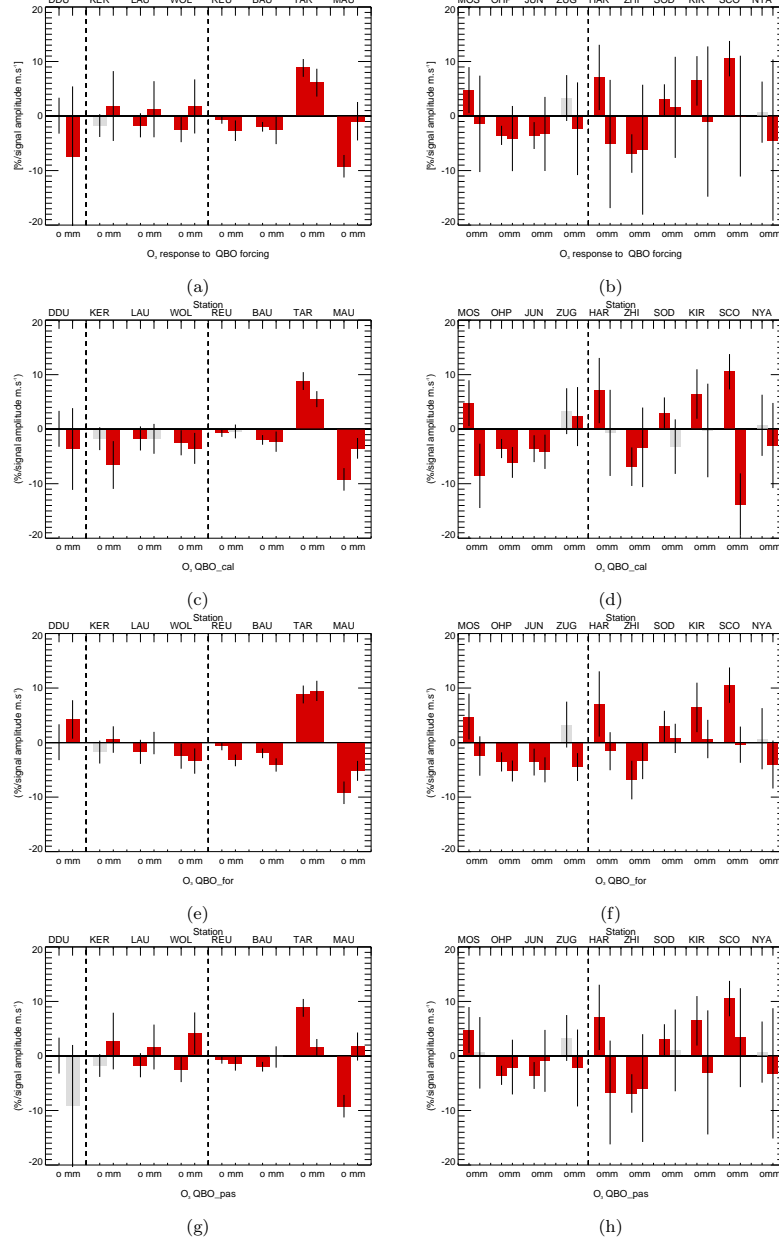


Figure 49. — O_3 column sensitivity to the QBO forcing expressed as O_3 column % change per signal amplitude in $m.s^{-1}$ change in tropical zonal winds for: (a) and (b) all the CCMs, (c) and (d) CCMs with internally generated QBO, (e) and (f) CCMs with a forced QBO and (g) and (h) CCMs without a QBO. Observed (O) and modelled (MM) results are next to each other for each station. Red indicates statistically significant results whereas grey indicates results that are not statistically significant. The errors are indicated with the vertical bars.

analysed. The negative response shown at SH mid-latitudes in the observations is well reproduced in CCMs with internally generated QBO. The modelled maxima and minima seem also to be in better agreement with observations results when CCMs with a forced or naturally generated QBO are considered (see figure 49c to 49f). As expected, column ozone responses in CCMs without QBO do not correlate with responses in observations.

4.4.4.2 Total CH₄, N₂O, NO₂ and HCl Sensitivity to main external forcings

The trend term being the dominant contribution in the forced interannual variability for these tracer species, CH₄ and N₂O column trends at different stations for CCMs and observations are shown in figure 50a and 50b. For both tracer species (CH₄ and N₂O), modelled positive trends (positive response) at NH high latitude stations are consistent with observations. In these regions, CH₄ column trends (3-4%) are slightly higher than those of N₂O (3%). At middle latitudes, CH₄ column trends are positive in CCMs but not statistically significant in the observations making difficult the comparison. In contrast, N₂O column trends at middle latitudes are statistically significant in both observations and CCMs. CCMs underestimate N₂O column trends at SH and tropical stations with values around 2%/decade while observed values are about 5-6%/decade in the observations.

Regarding the NO₂sr column, figure 50c and 50d show only its response to aerosol forcing loading for the different stations due to its dominant role in forced variability. There is a good agreement between results from models and observations at almost all stations of the middle and high latitudes in both hemispheres with a sensitivity of about -3 or -4% for an aerosol column increase of 50 $\mu\text{m}^2.\text{cm}^{-2}$ (except at HAR and NYA where the results are found to be not statistically significant in the observations). Otherwise, at the other stations and, in particular, at the tropical stations, there is a lot of scatter in the results. The differences between results from CCMs and observations are large and often results are not statistically significant.

The stratospheric trend in HCl is expected to follow the tropospheric loading of organic chlorine with a time lag due to stratospheric transport time scales. HCl column trends in observations and CCMs (figure 50e) are reasonably consistent with values ranging from 1 to 4%/decade except at 2 stations (MOS and KIR). While the discrepancy at KIR station is probably due to the non statistically significant results found in observations, the negative trend in the observations at MOS which is in disagreement with CCMs results is explained by a sharp rupture and shift found in the time series due to a change of instrument (see figure 51).

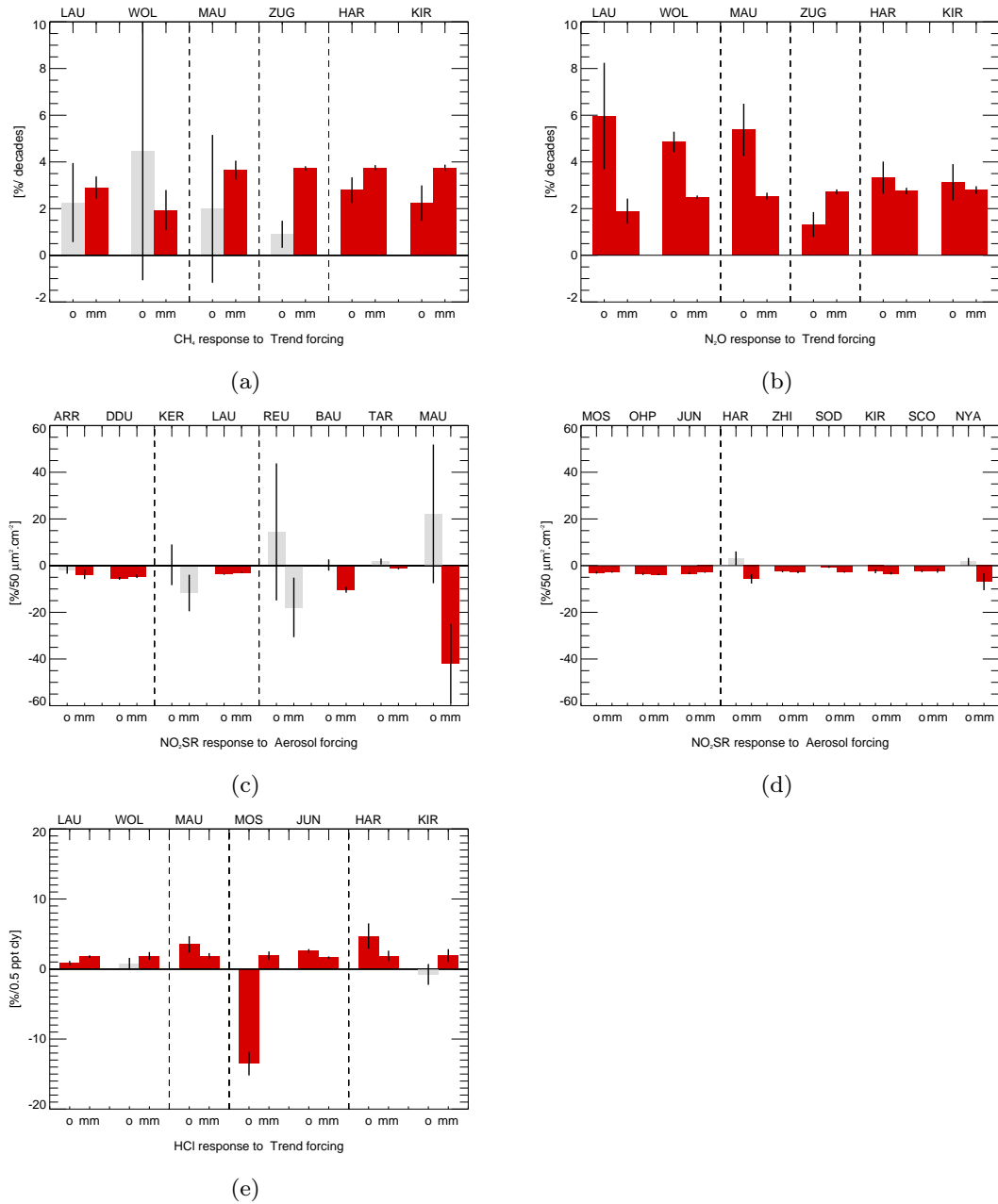


Figure 50. – (a) CH_4 column trend expressed as percentage change per decade; (b) N_2O column trend expressed as percentage change per decade; (c) and (d) sunrise NO_2 column sensitivity to aerosol forcing expressed as percentage change in NO_2 column per change of $50 \mu\text{m}^2 \cdot \text{cm}^{-2}$ in surface aerosol density column; (e) HCl column trend expressed as percentage change in HCl column per change in chlorine loading. Observed (O) and multi-model modelled mean (MM) results are next to each other for each station. Red indicates statistically significant results whereas grey indicates results that are not statistically significant. The errors are indicated with the vertical bars.

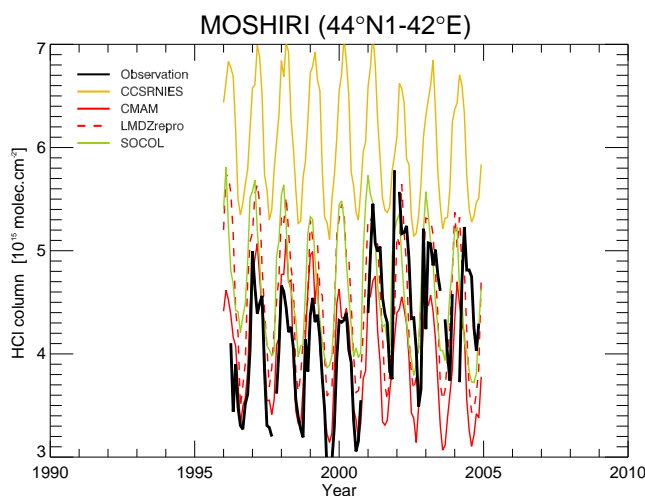


Figure 51. — Observed and CCMs HCl column time series at Moshiri. The black line corresponds to the measurements. Color coding is yellow for CCM CCSRNIES, red for CCM CMAM, dashed red for CCM LMDz-REPROBIS and green for CCM Socol.

4.5 Summary and conclusions

The primary aim of the paper is to assess how well CCMs are able to reproduce the effects of key external forcings (QBO, ENSO, aerosol loading, solar irradiance and stratospheric halogen loading/trend) on stratospheric chemical composition above specific measurement sites. The measurements sites are part of the global NDACC network and cover most of the main latitudinal regions (tropics, midlatitudes, polar regions). Our study considers NDACC homogenous long time series of ground-based column measurements of ozone, reactive nitrogen species, inorganic chlorine species, N_2O and methane. The observational and modelled time series are processed in exactly the same way in order to make the CCMs and observational results as comparable as possible. The relative importance of different sources of variability in stratospheric chemical composition is estimated. First, we analyse seasonal cycles and variances of the raw and deseasonalized time series. Then, by means of multiple linear regressions on deseasonalized time series, the forced and interannual components of the variability are estimated. As seasonal variations vastly dominate the intra-annual variability, we consider that the variability left in the deseasonalized time series is the inter-annual variability. The contributions of individual external forcings to the forced inter-annual variability in modelled and observational time series are also compared.

CCMs are able to reproduce the broad features of the observed annual cycle in column ozone, even deviations from the zonal mean. Because of strong deviations from the zonal mean at mid and high latitude sites, modelled chemical composition time series above measurements sites are reconstructed from CCMs 3-D fields instead of the usual zonal mean fields. Total variances in observational and CCMs ozone column time series are very well correlated and exhibit a clear latitudinal dependency with increasing variability with latitude. The inter-annual variability (after seasonal adjustment) in

total ozone follows the same behaviour but with reduced amplitudes reflecting the major contribution of the seasonal cycle to the total variability. Overall, CCMs tend to underestimate slightly the ozone column inter-annual variability. The bias is even more pronounced when the modelled fields are zonally averaged. The most important external forcings for the tropical inter-annual variability are the QBO and solar variability. They are still responsible for around 20-40% of the inter-annual variability at the extratropical measurement stations. CCMs generally reproduce correctly the latitude dependency of the total column ozone trend derived from NDACC observations. Trends are found to be negative at mid and high latitudes with a peak at high latitudes of the SH. In the tropics, trends are found to be positive in both observations and CCMs with a varying degree of agreement depending on the station. A clear positive statistically significant solar signature is found in tropics in both CCMs and observations but the solar signature is generally underestimated in CCMs. For both observations and CCMs, the amount of variance explained by the aerosol forcing is very variable and strongly depends on the period covered by the time series, whether it is a background (non-volcanic) or volcanically active period. The QBO forcing explains a larger part (10-50%) of the inter-annual variability in tropics than in other regions (5-15%) in both observations and CCMs.

Regarding chemical tracers, the seasonal cycle in N_2O column is better reproduced by CCMs than the seasonal cycle of CH_4 columns which is found to be too flat compared to observations. CCMs overestimate both columns by about 5%. They also underestimate the total variability as well as the inter-annual variability of long-lived species. The inter-annual variability in CCMs is almost entirely explained by external forcings (mainly trend term) while the forced variability represents only around 20-45% of the inter-annual variability. CCMs underestimate very significantly the internal variability of long-lived species time series, suggesting that the internal variability in transport is not correctly reproduced in CCMs.

Generally, CCMs reproduce reasonably well the features of the seasonal cycle in total NO_2 column even if they tend to overestimate the summer maximum, especially in polar regions. In contrast to other species, the total variability of the NO_2 column tends to be overestimated in CCMs, especially at high latitude even after seasonal adjustment. It is certainly related to the use of $\text{NO}_{2\text{sr}}/\text{NO}_2$ ratio from a CTM when reconstructing sunrise NO_2 ($\text{NO}_{2\text{sr}}$) column from CCMs NO_2 daily mean fields. This generates a spurious variability. CCMs tend to overestimate the contributions of external forcing to the inter-annual variability of $\text{NO}_{2\text{sr}}$ column, especially at high latitude. It is mostly due to an overestimation of the NO_2 column response to the aerosol forcing. The seasonal cycle of HNO_3 column is found to be strong in CCMs and represents a very significant part of the total variability which is consistent with observations. The proportion of inter-annual variability explained by external forcing is generally overestimated by CCMs.

The total chlorine, approximated by the sum of HCl and ClONO_2 , column seasonal cycle is well reproduced by CCMs but there are strong biases in the chlorine partitioning and hence in the seasonal cycles of HCl and ClONO_2 columns. This model bias in the chlorine partitioning is indicative of model deficiencies in the chlorine chemistry. CCMs vastly underestimate the inter-annual variability of HCl , ClONO_2 and total chlorine column, especially in the NH. The fraction of inter-annual variability

explained by external forcings is generally overestimated in CCMs. Clearly, it is largely due to an underestimation of the internal variability in CCMs. While the results show a clear dominance of the trend term in the HCl column variance, other forcings contribute to the ClONO₂ column forced variability. As for other tracer species, the inter-annual variability of total chlorine (taken as HCl+ClONO₂) is mostly explained by external forcings in CCMs with a significant contribution of the trend. In contrast, the externally forced variability is not responsible of the majority of the inter-annual variability in total chlorine column time series.

The first finding of this study is that the long time series of ground-based measurements are very useful in the evaluation of CCMs. Although CCMs reproduce reasonably well seasonal cycles in stratospheric chemical composition, they very significantly underestimate the inter-annual variability. They are able to simulate most of the externally forced variability and even specific responses to individual external forcings. However, the analysis of observational time series shows that the internally generated variability represents a large fraction of the inter-annual variability and CCMs vastly underestimate this internal variability. As a result, the forcings are responsible of much larger fractions of the variability in CCMs time series than in observational time series. This lack of internal variability in CCMs might partly originate from the surface forcing by analysed SSTs. It would be interesting to carry out similar simulations with CCMs coupled to ocean models and use the same methodology to analyse the different components of the inter-annual variability.

Chapitre 5

Variabilité de la vapeur d'eau stratosphérique

Sommaire

5.1	Contexte scientifique	131
5.1.1	Rôle dans la chimie stratosphérique et le climat	131
5.1.2	Tendances de la vapeur d'eau	132
5.1.3	Rupture en 2001	134
5.1.4	Etat de la modélisation et plan	135
5.2	Variabilité de la vapeur d'eau dans la stratosphère à partir de la longue série temporelle (1981-2004) à Boulder	136
5.2.1	Tendance	137
5.2.2	Cycle saisonnier	137
5.2.3	Périodogrammes	139
5.2.4	Variabilité expliquée par les forçages externes	143
5.2.5	Tests de sensibilité sur la longueur de la série et sur l'approche zonale	145
5.2.5.1	Tendance	145
5.2.5.2	Cycle saisonnier	147
5.2.5.3	Périodogrammes	148
5.2.5.4	Variabilité expliquée par les forçages externes	152
5.3	Phénomènes de ruptures	155
5.3.1	Ajustement de la méthode de détection des ruptures	155
5.3.2	Analyse des ruptures détectées dans les forçages externes	156
5.3.3	Analyse des ruptures des longues séries temporelles de vapeur d'eau à Boulder	157
5.3.4	Tests de sensibilité	160
5.3.5	Phénomène de ruptures dans les régions tropicales	160
5.3.5.1	Vapeur d'eau	161

Chapitre 5. Variabilité de la vapeur d'eau stratosphérique

5.3.5.2	Ozone	164
5.3.5.3	Température	166
5.3.5.4	Méthane	168
5.3.6	Variabilité forcée vs variabilité interne	170
5.4	Conclusions et perspectives	172

Dans ce chapitre, nous avons analysé la variabilité de la vapeur d'eau dans la stratosphère et nous avons également évalué la capacité des modèles de chimie-climat à la reproduire. Nous présentons dans une première partie (section 5.1) le contexte scientifique associé à cette variabilité qui est encore aujourd'hui difficile à comprendre. Puis, dans une seconde partie (section 5.2), nous analysons la variabilité de la longue série de mesures de vapeur d'eau obtenues à partir des sondes à Boulder (tendance, cycle saisonnier, analyse spectrale, MLR) que nous comparons à l'analyse des simulations des CCM. Dans la section 5.3, nous nous intéressons particulièrement aux phénomènes de ruptures dans les séries temporelles qui relèvent de la variabilité inter-annuelle. Pour cela, nous avons mis en place une méthodologie de détection et d'analyse de ruptures que nous avons appliqué aux séries temporelles issues des mesures de vapeur d'eau effectuées à Boulder et des simulations des CCM. Puis nous avons étendu cette approche aux mesures de vapeur d'eau et à d'autres champs stratosphériques (ozone, température, CH_4) des régions tropicales à partir des observations du satellite HALOE (section 5.3.5). Pour finir, nous nous sommes intéressés de savoir si ces ruptures sont induites par les forçages externes ou si elles relèvent de la variabilité interne (section 5.3.6).

5.1 Contexte scientifique

5.1.1 Rôle dans la chimie stratosphérique et le climat

La vapeur d'eau dans la stratosphère joue un rôle important dans le bilan radiatif, et donc sur les températures de la stratosphère. Elle influence aussi indirectement sur les processus chimiques et la concentration de l'ozone stratosphérique.

Dans la troposphère, la vapeur d'eau est présente en grande quantité, elle absorbe l'énergie solaire dans le proche infrarouge (2,66 à 2,74 μm) provoquant le réchauffement de la troposphère (effet de serre naturel). L'absorption du rayonnement infrarouge par la vapeur d'eau dans la stratosphère conduit à un refroidissement global dans la stratosphère. L'ensemble des modèles numériques s'accorde sur le fait qu'une augmentation de la concentration en vapeur d'eau dans la stratosphère conduit à accentuer le refroidissement de la stratosphère et au réchauffement de la troposphère [Oinas *et al.*, 2001]. Le refroidissement induit par l'augmentation de 0,04 ppmv.an⁻¹ de la vapeur d'eau sur la période entre 1979 et 1997 dans la stratosphère, représente un refroidissement d'environ 0,3 à 0,4 K dans la stratosphère [Forster and Shine, 2002]. D'après l'analyse de Dvortsov and Solomon [2001], une augmentation de la vapeur d'eau d'environ 1 %.an⁻¹ conduit à un refroidissement de la basse stratosphère des moyennes latitudes variant entre -0,25 à -0,35 K.décennie⁻¹ en fonction de l'altitude. Cette diminution de la température pourrait représenter jusqu'à 30 à 50% du refroidissement observé ces dernières décennies [WMO, 1999]. Une augmentation constante de 0,05 ppmv.an⁻¹ de la vapeur d'eau stratosphérique conduit à un forçage radiatif global de 0,63 W.m⁻² depuis 1960 [Forster and Shine, 2002], ce qui représente 40% du forçage dû à l'ensemble des gaz à effet de serre et 75% du forçage dû au CO_2 . Il apparaît clairement que l'effet des variations de la vapeur d'eau stratosphérique doit être pris en compte dans les problématiques liées aux changements climatiques si les concentrations

de vapeur d'eau augmentent dans ces proportions dans la stratosphère.

En outre de son rôle radiatif, la vapeur d'eau réagit dans la stratosphère avec l'oxygène moléculaire pour former des radicaux hydroxyles (OH) destructeurs d'ozone. Les quantités de vapeur d'eau peuvent également influencer la formation des PSC à la surface desquels se produisent des réactions chimiques catalysant la destruction d'ozone. Ainsi, les fluctuations de la vapeur d'eau peuvent perturber les cycles catalytiques de destruction de l'ozone. Dans la moyenne atmosphère, la vapeur d'eau est la source du radical OH qui, en réagissant avec NO_2 pour former du HNO_3 , élimine les radicaux azotés NO_x qui sont les principaux destructeurs d'ozone dans ce domaine d'altitude. Dans la haute stratosphère, les cycles destructeurs d'ozone sont principalement contrôlés par la présence des radicaux hydrogénés (HOx) et chlorés (Clx). D'après l'étude de *Dvortsov and Solomon* [2001], une augmentation de la vapeur d'eau de $1\%.\text{an}^{-1}$ conduit à une diminution de la colonne totale d'ozone aux moyennes latitudes de $0,3\%.\text{décennie}^{-1}$ et à une diminution de la concentration d'ozone de $0,7\%.\text{décennie}^{-1}$ et de $1\%.\text{décennie}^{-1}$ respectivement dans la basse et la haute stratosphère. La concentration de l'ozone varie plus ou moins linéairement en fonction du forçage de la vapeur d'eau [*Dvortsov and Solomon*, 2001; *Stenke et al.*, 2005]. En outre, le refroidissement et l'humidification de la basse stratosphère polaire, induit par l'augmentation de la vapeur d'eau décrite par *Oltmans et al.* [2000] ; *Nedoluha et al.* [1998], tendent à favoriser la formation des PSC et ainsi à accroître la prédiction de la perte d'ozone en Arctique de 30% d'ici 2020-2030 [*Tabazadeh et al.*, 2000].

En raison des nombreuses implications que peuvent induire une variation de la vapeur d'eau sur la dynamique, le bilan radiatif et la chimie de la stratosphère, il est important de comprendre les mécanismes engendrant les fluctuations et les tendances de la vapeur d'eau stratosphérique. Généralement, les modulations de la vapeur d'eau sont fortement corrélées aux variations de la température au voisinage de la tropopause [*Randel et al.*, 2004] dont la variabilité peut se décomposer en deux composantes [*Fueglistaler*, 2012]. La première, dominante, correspond aux variations zonales et symétriques de la température et la seconde est associée aux variations asymétriques principalement expliquées par l'ENSO [*Scaife et al.*, 2003; *Randel et al.*, 2004; *Fueglistaler and Haynes*, 2005].

5.1.2 Tendances de la vapeur d'eau

L'analyse de *Oltmans et al.* [2000] effectuée à partir des sondages ballons à Whashington et à Boulder a montré une augmentation de la vapeur d'eau de 1 et $1,5\%.\text{an}^{-1}$ (soit 0,05 à 0,07 ppmv. an^{-1}) aux moyennes latitudes depuis la deuxième moitié du 20^{ème} siècle dans la basse stratosphère (entre 18 et 26 km d'altitude). D'autres données corroborent cette tendance, notamment à plus haute altitude et sur une échelle globale, et parmi elles, les données de vapeur d'eau du satellite HALOE. Ces observations montrent, pour la période entre 1992 et 1996, une augmentation de 0,04 à 0,09 ppmv. an^{-1} entre 35 et 65 km d'altitude [*Evans et al.*, 1998], et pour la période entre 1992 et 1997, une augmentation de 0,129 ppmv. an^{-1} entre 40 et 60 km d'altitude [*Nedoluha et al.*, 1998]. Les travaux de *Rosenlof et al.* [2001], reprenant 10 jeux de données et couvrant l'ensemble de la période entre 1954 et 2000, montrent également une augmentation de $1\%.\text{an}^{-1}$ soit 0,045 ppmv. an^{-1} ce qui représente un accroissement

de 2 ppmv depuis le milieu des années 1950. En revanche dans la basse stratosphère (en dessous de 23 km d'altitude), l'analyse de *Randel et al.* [2004] montre une diminution de $0,5 \text{ \%}.\text{an}^{-1}$ de la vapeur d'eau dans les observations HALOE., voire une stabilisation de la concentration en vapeur d'eau suivant le niveau d'altitude. Cependant, il faut souligner que les données HALOE sont moins fiables dans ce domaine d'altitude [*Kley et al.*, 2000]. Suite à deux corrections sur le biais de l'instrument de mesures des observations à Boulder, la ré-analyse de *Scherer et al.* [2008] montre que les estimations de tendances de *Oltmans et al.* [2000] sont revues à la baisse de 40%. L'augmentation de la vapeur est ainsi réévaluée à $0,3\text{-}0,7 \text{ \%}.\text{an}^{-1}$ entre 1981 et 2006, et cette étude fait également état d'une diminution de la vapeur d'eau stratosphérique après 2000. *Hurst et al.* [2011] montrent que la longue série (30 ans, 1980-2010) de mesures effectuées à Boulder, peut être décomposée en plusieurs sous-périodes. Ces différentes sous-périodes sont séparées par des discontinuités dans les tendances observées en 1991, 2001 et 2005. Parmi ces sous-périodes, seule la période entre 2001 et 2005 présente une diminution de la vapeur d'eau en dessous de 24 km. L'analyse de *Fueglistaler* [2012], montre également que l'estimation de tendances des observations de vapeur d'eau à partir des mesures d'HALOE, pour la période entre 1992 et 2005, nécessite d'être subdivisée en sous-périodes. De plus cette étude préfère considérer l'évolution de la vapeur d'eau dans la stratosphère comme un scénario d'évolution marqué par deux créneaux négatifs de 1 an et 3 ans situés respectivement en 1991 et 2001, plutôt qu'une tendance linéaire positive jusqu'en 2001 suivie d'une tendance linéaire négative. Ces études soulignent l'importance de la période choisie dans le calcul et l'analyse des tendances et révèlent également les grandes différences obtenues suivant les instruments de mesures considérés. Ces différences de mesures entre les instruments peuvent atteindre entre 10 et 30% [*Kley et al.*, 2000] et peuvent donc être supérieures à l'incertitude liée aux calculs de tendances, ce qui ne permet pas de combiner les différents jeux de données pour obtenir une tendance à long terme.

L'analyse de *Rosenlof et al.* [2001] montre que l'augmentation du méthane dans la troposphère causée par les activités humaines puis son transport dans la stratosphère, où il s'oxyde pour former de la vapeur d'eau, peut à lui seul expliquer la moitié de la tendance observée par *Oltmans et al.* [2000] soit $0,028 \text{ ppmv}.\text{an}^{-1}$ d'après *Evans et al.* [1998]. La réévaluation des tendances des observations de vapeur d'eau plus récentes [*Rohs et al.*, 2006] montre que l'augmentation du méthane ne peut expliquer que 25 à 34% de la tendance ($1 \text{ \%}.\text{an}^{-1}$) de la vapeur d'eau stratosphérique. Le trafic aérien peut induire des fluctuations des teneurs en vapeur d'eau de la basse stratosphère des moyennes latitudes de l'hémisphère nord. Cependant, il ne peut être responsable que de $0,018 \text{ \%}.\text{an}^{-1}$ vers 24 km et ne peut pas expliquer la tendance observée à plus haute altitude *Danilin et al.* [1998]. *Joshi and Shine* [2003] ont montré que les éruptions volcaniques peuvent être responsables de changements importants dans les teneurs de vapeur d'eau. Néanmoins, l'effet des éruptions volcaniques reste de courte durée et ne permet pas, ainsi, d'expliquer les tendances observées ces 20 dernières années [*Dameris et al.*, 2005]. *Fleming et al.* [1995] proposent également que les fluctuations observées dans les séries temporelles de la vapeur d'eau soient le résultat du changement du flux ultra-violet lié au cycle solaire. Cependant, cette hypothèse ne permet pas d'expliquer la structure verticale des tendances observées.

Le changement de la vapeur d'eau dans la stratosphère a plus vraisemblablement pour origine les

échanges entre la troposphère et la stratosphère, soit par le biais de changements de la circulation générale, soit par le biais de modifications de la température à la tropopause. En effet, la température à la tropopause tropicale contrôle la quantité de vapeur d'eau entrant dans la stratosphère. Pour expliquer la tendance positive observée, il faudrait que les températures à la tropopause augmentent de $0,1 \text{ K.an}^{-1}$ [Nedoluha et al., 1998]. Or les observations indiquent plutôt une diminution de $0,57 \pm 0,06 \text{ K.décennie}^{-1}$ de la température dans la région de la tropopause tropicale [Simmons et al., 1999; Seidel et al., 2001; Zhou et al., 2001]. Ainsi seule les modifications de la circulation entre la troposphère et la stratosphère, en particulier les mécanismes et les chemins d'entrée de la vapeur d'eau troposphérique dans la stratosphère, semblent être à même d'expliquer la part de la tendance positive de la vapeur d'eau qui n'est pas liée à l'augmentation du méthane. La circulation résiduelle a augmenté au cours du 20^{ème} siècle, cet accroissement est induit par une augmentation l'activité ondulatoire des ondes planétaires tropicales [Butchart and Scaife, 2001; Butchart et al., 2006]. Les changements climatiques produisent une modification vers l'ouest des vents zonaux moyens aux tropiques et dans la basse stratosphère subtropicale accompagnée d'une augmentation des flux des ondes planétaires émanant des tropiques. D'après les simulations des CCM, pendant la deuxième moitié du 20^{ème} siècle, le système climatique a répondu à l'augmentation des gaz à effet de serre par une augmentation des échanges de masse de l'ordre de $2\%.\text{décennie}^{-1}$ [Butchart et al., 2006]. En outre, de plus grandes valeurs de SST sont attendues dans un climat plus chaud et peuvent changer également la circulation générale de Brewer-Dobson dans la basse stratosphère tropicale de l'hémisphère d'été via la convection profonde [Deckert and Dameris, 2008]. Les projections des CCM montrent que de plus chaudes SST entraînent une augmentation de la propagation vers le haut des flux d'Eliassen-Palm (EP) qui modulent la circulation générale et entraînent une diminution de l'ozone et de la température. Cependant ces modifications sont locales et sont présentes seulement dans l'hémisphère d'été.

5.1.3 Rupture en 2001

Après 2001, les différents jeux de données s'accordent entre eux et montrent une rapide diminution suivie d'une stabilisation de la concentration de la vapeur d'eau stratosphérique [Randel et al., 2004, 2006; Scherer et al., 2008; Solomon et al., 2010]. Cette diminution de 0,2 à 0,4 ppmv en dessous de 30 km d'altitude représente 5 à 15% de la teneur moyenne à ces altitudes. Cette discontinuité observée en 2001 dans les séries de mesures de vapeur d'eau est également présente dans les mesures de température et d'ozone et représente respectivement -1 K et $\sim -10\%$ de la valeur moyenne près de la tropopause tropicale dans les radiosondages SHADOZ [Randel et al., 2006]. En outre, cette discontinuité est également présente dans les températures de surface de la mer (SST) au-dessus du Pacifique [Rosenlof and Reid, 2008; Solomon et al., 2010].

Randel et al. [2006] suggèrent que cette brusque discontinuité de 2001 pourrait provenir soit d'une augmentation des mouvements ascendants dans la circulation générale, soit de l'augmentation de la convection profonde tropicale, soit de la combinaison des deux processus. La convection profonde influence à la fois la température et l'ozone à la tropopause tropicale sur des régions localisées [Kuang

and Bretherton, 2004; Folkins et al., 2002]. Néanmoins, il est difficile d'expliquer la brusque discontinuité de 2001 observée sur de larges bandes de longitudes par un seul mécanisme. De plus, l'influence de la convection profonde sur l'ozone est attendue pour être importante principalement en dessous de 14 km [Folkins et al., 2002; Solomon et al., 2005] mais ne permet pas d'expliquer les changements de 2001 observés également à des niveaux d'altitudes supérieurs. Tselioudis et al. [2010] montrent que l'activité de la convection tropicale a augmenté entre 1980 et 2000 en corrélation avec la température à la tropopause et la teneur en vapeur d'eau. L'activité convective est un paramètre qui influence très certainement l'évolution de la vapeur d'eau. Cependant, la forte chute de 2001 est uniquement observée dans l'activité convective dans la région du Pacifique-Ouest (105° E-150° E). L'analyse de Solomon et al. [2010] montre, qu'entre 2000 et 2009, les anomalies de la température à la tropopause et de la teneur en vapeur d'eau sont corrélées aux valeurs de SST de la *warm pool* dans l'océan Pacifique-Est (171° W-200° W). Cependant, lorsque l'on considère un domaine temporel plus large (1980-2000), les corrélations entre les anomalies de la température à la tropopause et les SST alternent leurs signes. La corrélation observée après 2001 apparaît comme passagère et n'est pas associée à un changement de régime [Solomon et al., 2010].

Les mouvements ascendants tropicaux s'avèrent être le mécanisme le plus à même d'expliquer les changements observés en 2001 dans les séries temporelles de vapeur d'eau, température et ozone. Ces mouvements ascendants permettent notamment d'expliquer la symétrie longitudinale et le maximum à la tropopause [Randel et al., 2006; Rosenlof and Reid, 2008]. Les champs de la vitesse verticale résiduelle issus des analyses NCEP montrent également des anomalies positives après 2001 à 100 hPa entre 20° N et 20° S cohérentes avec la diminution de la température à la tropopause et l'appauvrissement en ozone observé. D'après les données NCEP, cette augmentation des mouvements ascendants après 2001 est issue d'une légère augmentation de la divergence du flux d'Eliaassen-Palm (EP) dans la haute troposphère et la basse stratosphère subtropicale. L'effet radiatif direct d'une anomalie d'ozone sur la température vient s'ajouter au mécanisme précédent. En effet, une variation de 10% de l'ozone à la tropopause engendre un refroidissement de 0,5 K. Ce mécanisme représente une contribution importante à la rupture en température observée en 2001 [Randel et al., 2006]. D'une manière générale, les analyses montrent qu'une augmentation des flux EP s'accompagne d'une augmentation des mouvements ascendants dans les régions subtropicales qui à son tour entraîne une diminution de l'ozone, de la vapeur d'eau et de la température. La diminution de la vapeur d'eau correspondante représente 10% des teneurs en vapeur d'eau de fond [Randel et al., 2006]. Les séries temporelles de mesures de la vapeur d'eau présentent clairement une brusque discontinuité en 2001 dont l'origine reste encore aujourd'hui mal comprise.

5.1.4 Etat de la modélisation et plan

D'après le chapitre 5 du rapport CCMVal [2010], la plupart des modèles de chimie climat sont capables de reproduire le cycle saisonnier de la basse stratosphère tropicale (un minimum au printemps dans l'hémisphère nord et un maximum à la fin de l'hiver de l'hémisphère sud) de la vapeur d'eau

bien que la plupart des modèles ont un minimum du cycle saisonnier décalé de 1 à 2 mois trop tôt. En revanche, les modèles présentent une très grande dispersion dans les quantités de vapeur d'eau stratosphérique. Ces quantités peuvent varier entre 2 et 6 ppmv [Gettelman *et al.*, 2010] dans les résultats de CCM alors qu'elles varient entre 3 et 4 ppmv [Kley *et al.*, 2000] dans les observations HALOE. Les observations HALOE montrent une tendance négative de $0,05 \text{ ppmv.an}^{-1}$ entre 1992 et 2004, et la plus part des modèles présente aussi une tendance négatives sur la même période [Gettelman *et al.*, 2010]. Les modèles de chimie-climat sont capables de traduire les changements observés décrits précédemment (tendances positives pendant la seconde moitié du 20^{ème} siècle, forte corrélation avec la température à la tropopause tropicale et la cohérence avec les anomalies de SST) dans les changements de la vapeur d'eau stratosphérique [Gettelman *et al.*, 2010]. Les modèles prédisent une augmentation de la vapeur d'eau tout au long du 21^{ème} siècle de l'ordre de 0,5 à 1 ppmv par siècle [Gettelman *et al.*, 2010].

Nous nous sommes intéressés à évaluer la capacité des modèles à reproduire la variabilité de la vapeur d'eau et en particulier à reproduire des fortes chutes de la vapeur d'eau, comme celle observée en 2001. Nous avons utilisé les résultats de simulation de 5 CCM : CMAM, CCSRNIES, LMDz-REPROBUS, SOCOL et ULAQ que nous avons moyenné afin d'obtenir une représentation moyenne des CCM (MMM). Suivant l'analyse effectuée, les modèles ont été divisés en deux groupes : les modèles avec une QBO forcée notés MMM QBO_f et les modèles sans QBO notés MMM QBO_{Op}. Les simulations des différents CCM sont issues de la simulation REF-B1 décrite dans la section 2.1.2.1.

Pour réaliser cette évaluation nous avons divisé le chapitre en deux parties. Dans la première parties, nous avons analysé la longue série de mesures sondes de Boulder selon quatre diagnostics pour étudier la variabilité générale de la vapeur d'eau stratosphérique. Dans la seconde partie, nous nous sommes principalement intéressés aux phénomènes de ruptures, décrits dans la section 5.1.3, dans les séries temporelles de vapeur d'eau mais également dans les séries temporelles d'ozone, de température et de méthane.

5.2 Variabilité de la vapeur d'eau dans la stratosphère à partir de la longue série temporelle (1981-2004) à Boulder

Dans cette partie, nous nous sommes concentrés sur l'analyse de la variabilité de la vapeur d'eau à partir de la longue série de mesures effectuées à Boulder (40° N - 105° W). Cette série de mesures a déjà été présentée dans la section 2.2.2 de cette thèse. L'analyse de cette série de données sera accompagnée par celles issues de simulations de CCM afin d'évaluer la capacité des modèles à reproduire la variabilité de la vapeur d'eau aux moyennes latitudes de l'hémisphère nord. Notre méthodologie d'analyse repose sur 4 diagnostics composant l'architecture de cette partie : la tendance, le cycle saisonnier, les périodicités du signal et la proportion de la variabilité expliquée par les forçages externes. Afin

de compléter cette analyse, nous avons testé la sensibilité de nos résultats à la longueur de la série temporelle (diminution de la période d'analyse) et à l'approche zonale (moyenné zonalement et sur la bande de latitude entre 35 ° et 45 ° N). Pour l'analyse zonale, nous avons également utilisé les données vapeur d'eau de l'instrument HALOE (section 2.2.3).

5.2.1 Tendances

Les Figures 52 présentent l'évolution temporelle de la vapeur d'eau de 1981 à 2004 en rapport de mélange (ppmv) issue des observations sondes (courbe noire) et des simulations des différents CCM (courbes de couleurs) pour 3 niveaux d'altitudes (100, 80 et 50 hPa) à Boulder. Ces séries temporelles montrent toutes une augmentation de la vapeur d'eau de 1981 à 2000 quel que soit le niveau d'altitude. Alors que cette augmentation se poursuit au-delà de 2000 dans les simulations des CCM, les observations montrent clairement une rupture en 2001. Nous avons ainsi différencié sur les Figures 52, la tendance linéaire calculée entre 1981 et 2000 (trait gras) de celle calculée entre 1981 et 2004 (trait fin). La Table 9 résume les valeurs des tendances moyennées sur les trois niveaux de pression, qui ont été calculées sur les 2 périodes (1981-2004 et 1981-2000). En raison de la présence de la forte rupture en 2001, les observations présentent des tendances très différentes entre les deux périodes considérées. La tendance calculée entre 1981 et 2000 reste plus importante ($0,045 \pm 0,002 \text{ ppmv.an}^{-1}$) que celle entre 1981 et 2004 ($0,029 \pm 0,002 \text{ ppmv.an}^{-1}$) et cela quel que soit le niveau de pression même si l'écart entre les deux tend à diminuer quand l'altitude augmente (voir Figures 52). Les estimations des tendances (1981-2000) sont en bon accord avec celles d'autres analyses [Oltmans *et al.*, 2000; Rosenlof *et al.*, 2001]. Pour tous les niveaux de pressions, la Figure 52 révèle une grande dispersion des séries temporelles de la vapeur d'eau entre les différents modèles. Certains modèles surestiment légèrement les quantités de vapeur d'eau (ULAQ) et d'autres les sous-estiment très largement (LMDz-REPROBUS, CMAM). La Table 9 montre également que les CCM tendent à sous-estimer les valeurs des tendances. Les différences entre les tendances des CCM calculées sur les deux périodes sont très faibles. Seul le modèle ULAQ (Figures 52a) présente une tendance assez proche des observations sondes à 50 hPa et les tendances des autres modèles ne dépassent pas la valeur moyenne du CCM ULAQ de $0,023 \text{ ppmv.an}^{-1}$. Les modèles montrent des difficultés à reproduire le gradient positif de la vapeur d'eau avec l'altitude au-dessus de 80 hPa et plus particulièrement pour le modèle CCSRNIIES qui révèle même un gradient négatif sur ce domaine d'altitude [Eyring *et al.*, 2006]. L'évolution temporelle et la tendance de la moyenne des modèles (MMM), représentée en bleu sur les Figures 52, diffèrent beaucoup de celles des observations : les valeurs moyennes de vapeur d'eau sont sous-estimées et ce biais est plus prononcé lorsque l'altitude augmente. De plus, les tendances de la moyenne des modèles ne représentent qu'un quart des tendances observées (voir Table 9).

5.2.2 Cycle saisonnier

La distribution de la vapeur d'eau dans la stratosphère est principalement gouvernée par les processus dynamiques, microphysiques et chimiques (oxydation du CH_4). Aux moyennes latitudes, le cycle

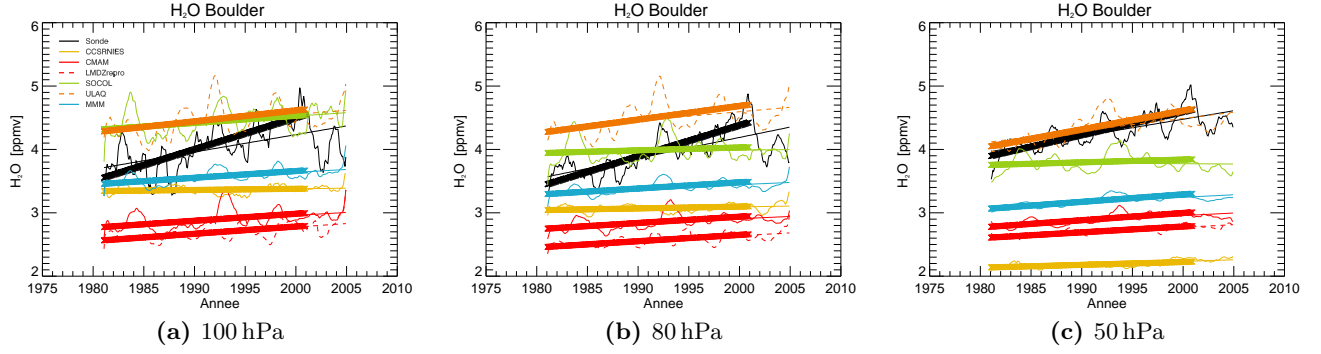


Fig. 52. — Evolution temporelle (de 1981 à 2004) du rapport de mélange de la vapeur d'eau (ppmv) à Boulder (40° N- 105° W), (a) à 100 hPa, (b) à 80 hPa et (c) à 50 hPa pour les observations sondes (noir), le CCM CCSRNIES (jaune plein), le CCM CMAM (rouge plein), le CCM LMDz-REPROBUS (rouge pointillé), le CCM SOCOL (vert clair plein), le CCM ULAQ (orange pointillé) et la MMM (bleu plein). La tendance linéaire de 1981-2000 est représentée en trait gras et la tendance linéaire de 1981-2004 est représentée en trait fin.

	1981-2000	1981-2004
Sondes	$0,045 \pm 0,002$	$0,029 \pm 0,002$
CCSRNIES	$0,003 \pm 0,001$	$0,003 \pm 0,001$
CMAM	$0,011 \pm 0,001$	$0,008 \pm 0,001$
LMDz-REPROBUS	$0,010 \pm 0,001$	$0,009 \pm 0,001$
SOCOL	$0,006 \pm 0,002$	$0,004 \pm 0,001$
ULAQ	$0,023 \pm 0,002$	$0,015 \pm 0,002$
MMM	$0,011 \pm 0,001$	$0,008 \pm 0,001$

Tab. 9. — Tendance de la vapeur d'eau (ppmv.an^{-1}) des observations sondes et les modèles pour la période de 1981-2000 et 1981-2004. Ces tendances représentent les moyennes sur 3 niveaux de pression 100, 80 et 50 hPa. L'erreur associée aux tendances correspond à $\pm \sigma$.

saisonnier est fortement lié aux modulations saisonnières de la circulation de Brewer-Dobson. Le cycle saisonnier de la vapeur d'eau est ainsi caractérisé par un minimum à la fin de l'hiver et un maximum à la fin de l'été et par une décroissance de son amplitude avec la pression [Kley *et al.*, 2000; CCMVal, 2010]. Le cycle saisonnier issu des observations sondes (courbe noire) effectuées sur le site de Boulder est présenté sur les Figures 53 ainsi que celui issu de la moyenne des CCM (MMM, courbe bleue) pour trois niveaux de pressions. Les observations sondes et la moyenne des modèles représentent les caractéristiques générales du cycle saisonnier de la vapeur d'eau. Comme nous l'avons déjà remarqué dans la section précédente, la moyenne des modèles tend à sous-estimer de l'ordre de 0,7 et 0,9 ppmv les teneurs de vapeur d'eau dans la stratosphère comparativement aux observations sondes. L'amplitude du cycle saisonnier est comparable entre les deux jeux de données, néanmoins nous pouvons noter un décalage de l'ordre de 1 mois des extrema de la MMM par rapport aux observations sondes. Le transport à grande échelle de la stratosphère est assez bien représenté dans les CCM [CCMVal, 2010] et l'analyse du cycle saisonnier des espèces à longue durée de vie tel que le N_2O permet d'exclure le transport à grande échelle dans les raisons qui pourrait expliquer ce décalage temporel. La diminution de l'amplitude du cycle avec l'altitude est cohérente entre la MMM et les observations. Le cycle est moins marqué à 80 hPa (voir Figure 53b) et son amplitude est très faible à 50 hPa (voir Figure 53c). L'écart type autour de ce cycle saisonnier des observations est plus élevé à 100 qu'à 50 hPa car les observations sont plus bruitées dans les basses altitudes. Alors que l'écart type autour de la moyenne des modèles est relativement constant avec l'altitude car la dispersion entre les modèles est constante avec l'altitude.

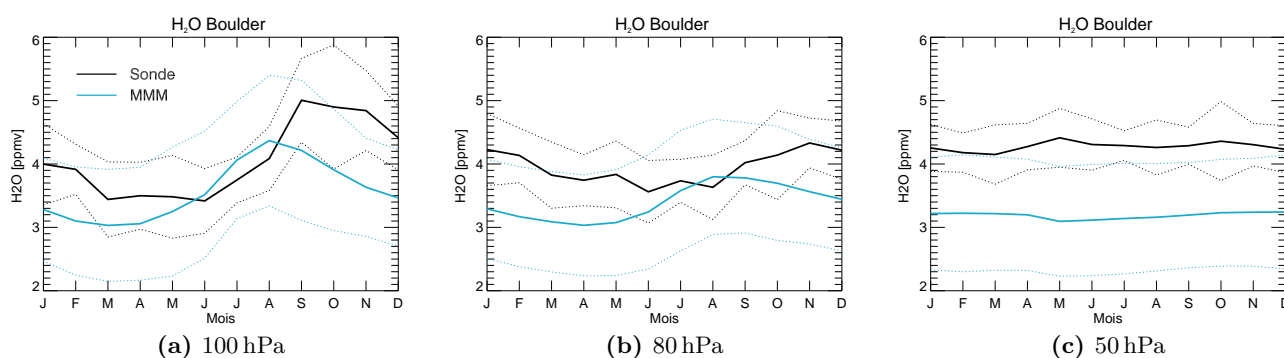


Fig. 53. — Cycle saisonnier du rapport de mélange de la vapeur d'eau (ppmv) à Boulder (40° N- 105° W) entre 1981 et 2004, (a) à 100 hPa, (b) à 80 hPa et (c) à 50 hPa pour les observations sondes (noir), la moyenne des modèles (bleu). Les écarts types des observations sondes et de la MMM sont représentés respectivement en noir pointillé et en bleu pointillé.

5.2.3 Périodogrammes

Dans cette section, nous avons utilisé la méthode de Lomb et Scargle décrite dans la section 3.3 pour obtenir les périodogrammes des séries temporelles de la vapeur d'eau, ainsi nous avons détecté

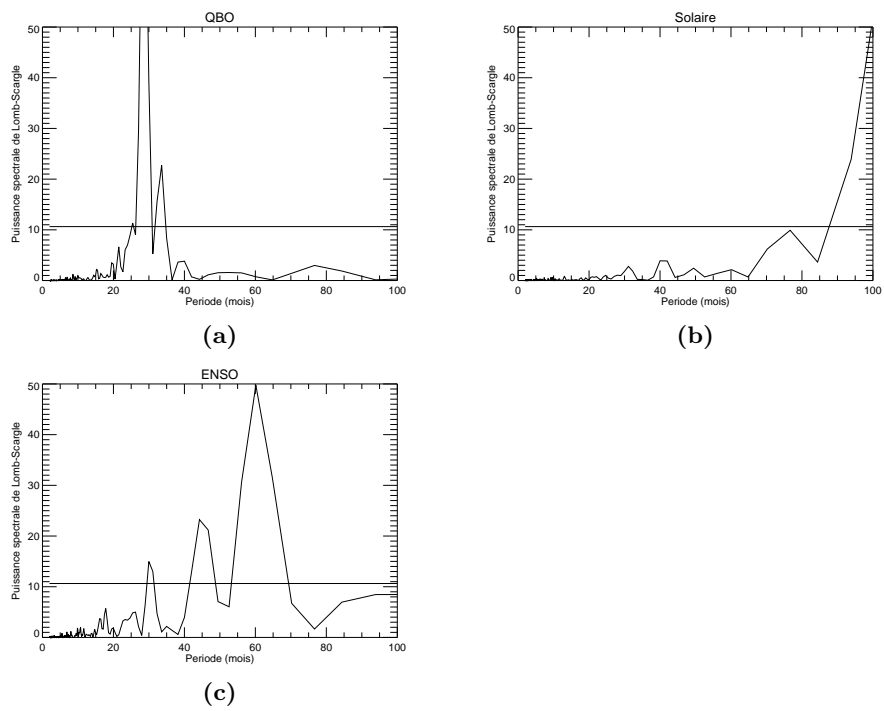


Fig. 54. — Périodogramme des forçages externes pour la période de 1981 à 2004, (a) la QBO, (b) le forçage solaire et (c) l'ENSO. La droite horizontale représente le seuil de significativité défini par la méthode de Lomb et Scargle.

les périodes qui caractérisent ces séries temporelles. Cette méthode a l'avantage de traiter les séries de données irrégulières (*i.e.* séries ayant des données manquantes). Pour mieux comprendre les périodicités détectées dans la vapeur d'eau stratosphérique, nous avons dans un premier temps analysé les périodogrammes des forçages externes qui présentent des périodicités connues. Les Figures 54 présentent les périodogrammes des trois forçages externes : (a) la QBO, (b) le solaire et (c) l'ENSO. Les droites horizontales représentent les seuils de significativité des puissances spectrales estimées par la méthode de Lomb et Scargle. Le périodogramme de la QBO (voir Figure 54a) montre clairement un pic centré à 27 mois correspondant à sa périodicité principale dite « biennale » mais aussi deux autres sous-périodes à 25 et à 35 mois qui sont associées à des probabilités de détections beaucoup plus faibles. Ces deux sous-périodes représentent vraisemblablement l'écart type autour de la période à 27 mois, puisque la périodicité de la QBO n'est pas fixe (*i.e.* elle oscille entre 20 et 36 mois). Le périodogramme du forçage solaire (voir Figure 54b) montre une période significative au-delà de 85 mois (avec un maximum autour 120 mois) correspondant à la variabilité du cycle solaire d'environ 11 ans due au renversement de sa polarité. Sur la Figure 54c, le périodogramme de l'ENSO montre très clairement une périodicité à 30, 45 et 60 mois, en bon accord avec les périodes comprises entre 24 et 80 mois et un maximum de la puissance du spectre entre 40 et 50 mois décrits dans *AchutaRao and Sperber* [2002].

Les Figures 55 présentent les périodogrammes de la vapeur d'eau à partir des observations sondes (courbe noire), de la moyenne des modèles sans QBO en vert (QBOp, en haut) et avec une QBO forcée en rouge (QBOf, en bas), sur 3 niveaux de pressions (100, 80 et 50 hPa). Le périodogramme des observations sondes révèle un pic visible à 50 mois qui devient statistiquement significatif à partir de 50 hPa. Cette période est très comparable à celle trouvée dans le périodogramme de l'ENSO à 45 mois sur la Figure 54c. Au-delà de 80 mois, des valeurs élevées de puissance spectrale à 100 et 80 hPa restent statistiquement non significatives mais peuvent être associées à la variabilité basse fréquence de l'ENSO ou/et du forçage solaire. Un pic à 35 mois est aussi détecté à 80 hPa, celui-ci peut être relié à la QBO mais son signal est sûrement trop bruité pour être détecté de façon significative. Globalement, les différentes périodes associées aux forçages externes semblent se retrouver dans le périodogramme de la vapeur d'eau dans les observations sondes mais les puissances spectrales associées à ces périodes restent souvent statistiquement non significatives. Comme vu précédemment la variabilité dans les modèles est plus faible que dans les observations, ce qui signifie que la périodicité d'un signal apparaît plus facilement dans les séries temporelles des modèles. Avec un niveau de seuil de significativité semblable à celui des observations sondes, les puissances spectrales issues de l'analyse des séries de vapeur d'eau des CCM sont généralement supérieures, amplifiant ainsi l'amplitude de certains pics détectés dans les observations. Le pic à 50 mois, qui coïncide avec celui de l'ENSO, est détecté à tous les niveaux de pressions pour la moyenne des modèles avec ou sans QBO ; toutefois il est statistiquement significatif seulement pour la moyenne des modèles sans QBO. En effet, l'ajout d'une composante avec une forte périodicité dans une série, comme la QBO, induit une variabilité supplémentaire et donc tend à diminuer la significativité des détections des pics. A plus haute fréquence (< 40 mois), un pic à 35 mois est visible exclusivement dans les résultats de CCM avec une QBO forcée à tous les niveaux de

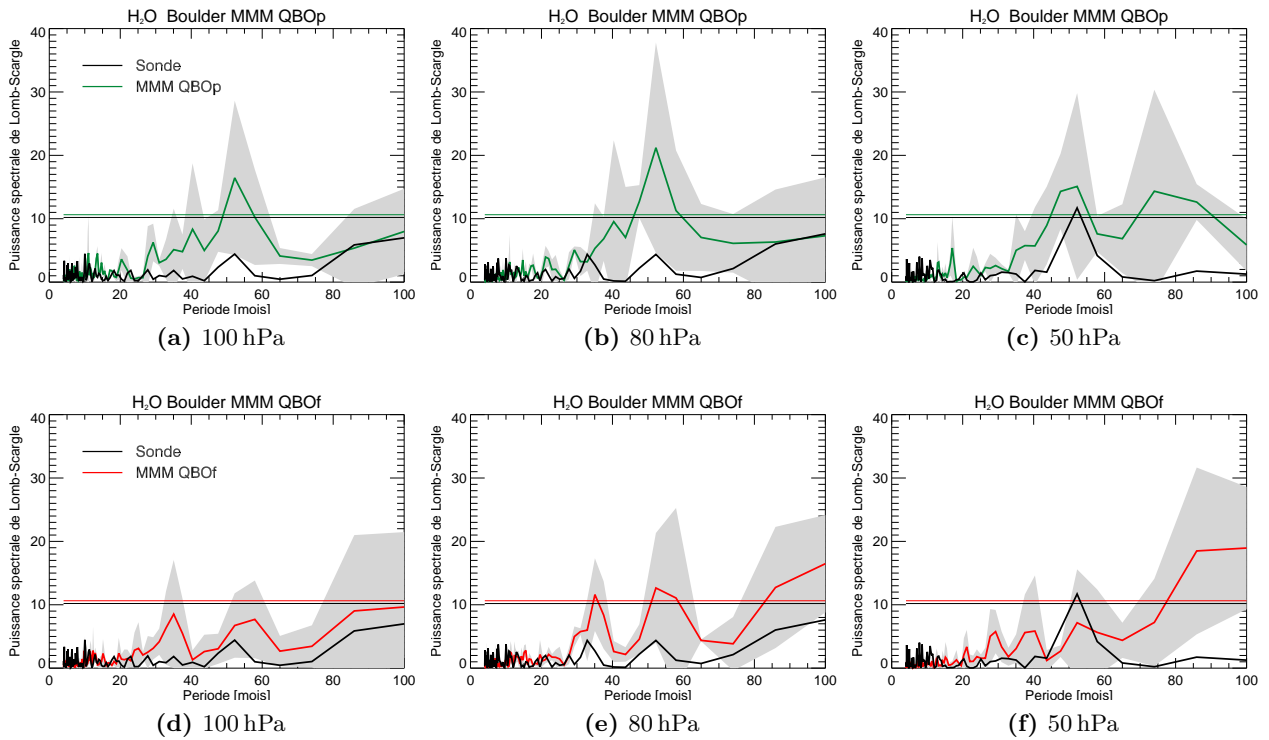


Fig. 55. – Périodogramme de Lomb et Scargle du rapport de mélange de la vapeur d'eau à Boulder à partir des observations sondes (noir) et de la moyenne des modèles sans QBO (en haut MMM QBOp vert) et de la moyenne des modèles avec QBO forcée (en bas QBOf rouge), à 100 hPa (à gauche), à 80 hPa (au centre) et à 50 hPa (à droite). Les zones grisées représentent les écarts types autour de la moyenne des CCM. Les droites horizontales correspondent au seuil de significativité défini par la méthode.

pressions. Cette période est proche de celle détectée dans le périodogramme des observations sondes à 80 hPa et qui coïncide avec le domaine spectral (25-35 mois) du pic de la QBO (voir Figure 54a). Au-delà de 80 mois, des valeurs élevées de puissances spectrales sont également présentes dans les périodogrammes des CCM, comme les observations sondes elles peuvent être associées à la variabilité basse fréquence de l'ENSO ou/et du forçage solaire.

5.2.4 Variabilité expliquée par les forçages externes

Données	Altitude (hPa)	Variance totale (ppmv^2)	variance désaisonnalisée (ppmv^2)	Cycle saisonnier (%)
Sondes	100	0,70	0,36	52,6
	80	0,30	0,24	20,8
	50	0,17	0,16	2,8
MMM	100	0,38	0,07	82,0
	80	0,16	0,04	76,9
	50	0,03	0,02	32,6

Tab. 10. – Variance des séries (ppmv^2), variance des séries désaisonnalisées (ppmv^2) et pourcentage de variance expliquée par le cycle saisonnier pour la période de 1981-2004.

Nous nous sommes intéressés dans cette section à la variance de la série temporelle de la vapeur d'eau à Boulder. La Table 10 présente les valeurs de la variance totale, la variance désaisonnalisée ainsi que la proportion (%) du cycle saisonnier par rapport à la variance totale, pour trois niveaux de pressions (100, 80 et 50 hPa), pour les observations sondes et la moyenne des modèles. Cette comparaison montre que la variance totale issue des observations est généralement deux fois plus élevée que celle issue de la moyenne des modèles pour tous les niveaux d'altitudes. Cette variance décroît avec l'altitude à la fois dans les observations et les modèles. Comme il a été remarqué dans la section 5.2.2, l'amplitude du cycle saisonnier est relativement comparable entre les observations et les modèles. Il en résulte ainsi qu'après désaisonnalisation, la variance reste toujours très largement sous-estimée par les modèles comparativement aux observations. Le cycle saisonnier représente une part très importante de la variance totale dans les résultats des modèles avec une contribution moyenne de 64% de la variance totale alors que dans les observations il ne représente que 25%. Il en résulte que les observations sondes ont une variabilité extra-saisonnière beaucoup plus élevée que les modèles. Cette contribution du cycle saisonnier décroît avec l'altitude, et ceci est à la fois visible dans les observations et dans les résultats des modèles. Cette diminution de la contribution du cycle saisonnier est cohérente avec la décroissance de l'amplitude du cycle saisonnier avec l'altitude décrit dans la section 5.2.2.

Cette variabilité désaisonnalisée, appelée variabilité inter-annuelle jusqu'à la fin du chapitre, est le résultat de la somme de la contribution linéaire des différents forçages externes et de la composante résiduelle. Cette dernière est la somme de la variabilité interne et de la contribution non linéaire des forçages externes. Dans le paragraphe suivant, nous nous intéressons à l'analyse de la contribution de la variabilité inter-annuelle de la vapeur d'eau expliquée par les forçages externes et nous évaluons la capacité des CCM à la reproduire. Pour cela, nous avons appliqué la méthode de régression linéaire

multiple (MLR) déjà décrite dans la section 3.2 de cette thèse sur les séries désaisonnalisées en utilisant les forçages externes (tendance, aérosols volcaniques, forçage solaire, QBO et ENSO) décrits dans la section 2.1.2.2 comme variables explicatives.

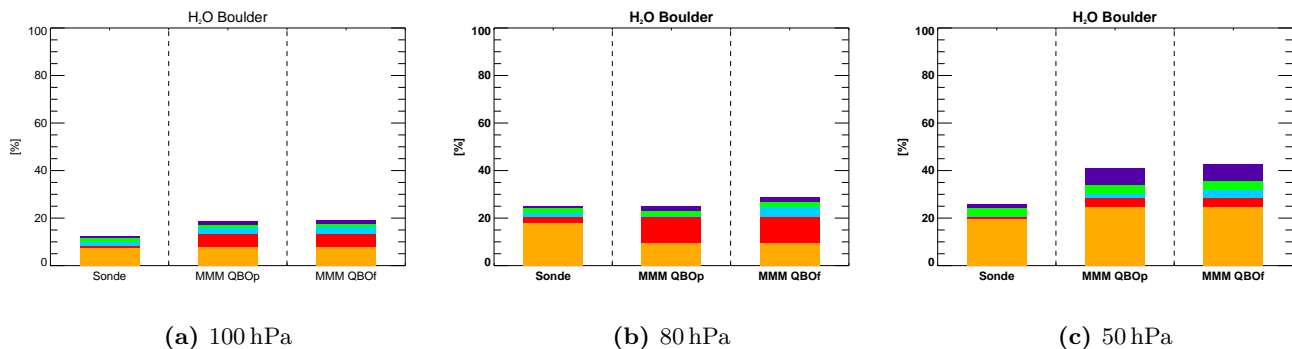


Fig. 56. — Somme des valeurs absolues des contributions des forçages externes à la variance inter-annuelle du rapport de mélange de la vapeur d'eau, (a) à 100 hPa, (b) à 80 hPa et (c) à 50 hPa pour les observations sondes, la moyenne des modèles sans QBO (MMM QBOp) et la moyenne des modèles avec QBO forcée (MMM QBOF). La contribution de la tendance est représentée en jaune, celle du forçage solaire en rouge, celle de la QBO en bleu clair, celle de l'ENSO en vert et celle des aérosols volcaniques en bleu foncé.

Nous analysons le coefficient de détermination (R^2) de la MLR qui représente le rapport entre la variance expliquée par les forçages externes et la variance inter-annuelle (section 3.2.5). La valeur absolue de ce paramètre ($|R^2|$) est définie comme le rapport de la somme des valeurs absolues de chaque contribution des forçages externes et la variance inter-annuelle. La comparaison de $|R^2|$ entre les observations sondes et la moyenne des modèles sans QBO (MMM QBOp) et avec QBO forcée (MMM QBOF) est présentée sur les Figures 56 pour trois niveaux de pressions. La contribution de la variabilité inter-annuelle expliquée par les forçages externes varie entre 15% à 100 hPa et 25% à 80 et 50 hPa dans les observations sondes. Ces contributions sont assez comparables dans les résultats de modèles même si elles ont tendance à être surestimées particulièrement à 50 hPa. Quel que soit le niveau d'altitude, le terme de tendance reste le forçage dominant de la variabilité expliquée par les forçages externes dans les observations. Il représente autour de 10% de la variance inter-annuelle à 100 hPa et 20% à 50 hPa. Les observations et les modèles sont en très bon accord, à l'exception du niveau 80 hPa où les modèles sous-estiment le terme de tendance pour en contre partie surestimer le terme solaire. A 100 et 50 hPa, le forçage solaire explique environ 5% de la variabilité inter-annuelle dans la MMM alors qu'elle est négligeable dans les observations. Les Figures 56 montrent une assez faible contribution du terme de QBO dans les modèles ainsi que dans les observations. La contribution de la QBO est légèrement accentuée dans les modèles avec une QBO forcée. La contribution du terme d'ENSO est comparable dans les observations et les modèles; elle représente entre 2 et 4% de la variance inter-annuelle. La contribution des aérosols volcaniques est quasiment négligeable dans les observations alors qu'elle représente jusqu'à 5% à 50 hPa dans les modèles.

5.2.5 Tests de sensibilité sur la longueur de la série et sur l'approche zonale

Afin d'étendre cette analyse aux observations satellitaires HALOE, nous avons réalisé des tests de sensibilité sur l'analyse précédente. Les observations HALOE couvrent un domaine temporel plus restreint que les mesures sondes effectuées à Boulder. Comme la fréquence temporelle de ces données est faible, il est nécessaire de les moyenner zonalement mais nous les avons aussi moyennées sur une bande de latitude (35°N - 45°N). Dans cette section, nous nous intéresserons à évaluer l'effet de la longueur de la série temporelle et l'impact de la moyenne zonale sur les résultats obtenus dans l'analyse de la vapeur d'eau à Boulder pour les 4 diagnostics (tendance, cycle saisonnier, périodogrammes et variabilité expliquée par les forçages externes). Pour cela, nous avons réduit la longue série de mesures effectuées à Boulder à 13 ans, correspondant à la période des mesures du satellite HALOE (1992-2004). La comparaison entre les résultats sur cette nouvelle série (courte période) avec ceux de la section précédente (longue période) permettra d'étudier la sensibilité des résultats à la longueur de la série. De plus, nous comparons également ces résultats avec ceux issus des données satellitaires HALOE moyennées entre 35° et 45°N afin de quantifier l'impact d'une approche zonale par rapport à l'approche locale dans notre analyse précédente. Lors de cette étude, les champs issus des modèles sont des champs 3-D notés T3M alors que pour l'approche zonale les champs issus des modèles sont des champs 2-D, moyennés zonalement notés T2Mz.

5.2.5.1 Tendence

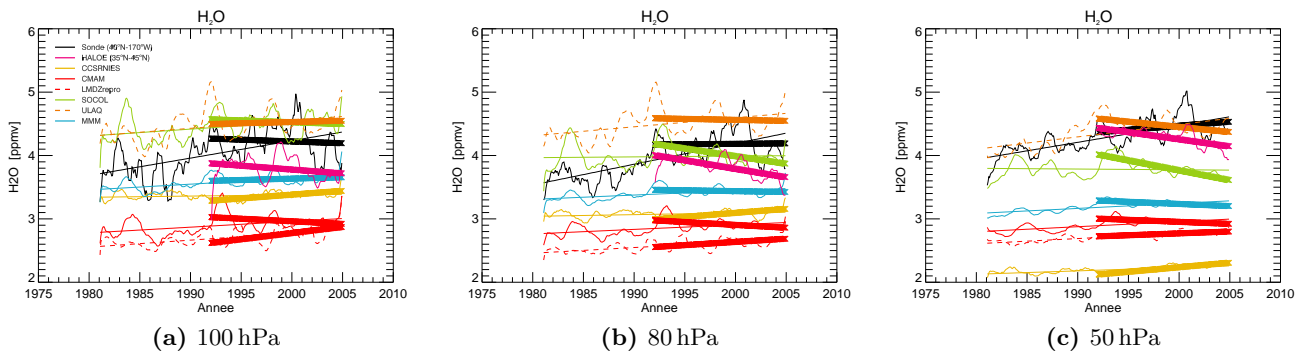


Fig. 57. — Evolution temporelle (de 1981 à 2004) du rapport de mélange de la vapeur d'eau (ppmv), (a) à 100 hPa, (b) à 80 hPa et (c) à 50 hPa pour les observations sondes à Boulder en noir, les moyennes zonales d'HALOE (35°N - 45°N) en rose, le CCM CSRNIES (T2Mz) en jaune plein, le CCM CMAM (T2Mz) en rouge plein, le CCM LMDz-REPROBUS (T2Mz) en rouge pointillé, le CCM Socol (T2Mz) en vert clair plein, le CCM ULAQ (T2Mz) en orange pointillé et la MMM en bleu plein. La tendance linéaire de 1992-2004 est en trait gras et la tendance linéaire de 1981-2004 est en trait fin.

Les Figures 57 présentent l'évolution temporelle de la vapeur d'eau à Boulder de 1981 à 2004 en rapport de mélange (ppmv) issue des observations sondes (courbe noire) et des simulations des

	1981-2004 (T3M)	1992-2004 (T3M)	1992-2004 (T2Mz)
Sondes	$0,029 \pm 0,002$	$0,003 \pm 0,002$	
HALOE			$-0,020 \pm 0,002$
CCSRNIES	$0,003 \pm 0,001$	$0,013 \pm 0,001$	$0,015 \pm 0,0008$
CMAM	$0,008 \pm 0,001$	$-0,008 \pm 0,002$	$-0,009 \pm 0,002$
LMDz-REPROBUS	$0,009 \pm 0,001$	$0,012 \pm 0,002$	$0,009 \pm 0,001$
SOCOL	$0,004 \pm 0,001$	$-0,020 \pm 0,003$	$-0,022 \pm 0,003$
ULAQ	$0,015 \pm 0,002$	$-0,005 \pm 0,004$	$-0,003 \pm 0,003$
MMM	$0,008 \pm 0,001$	$-0,002 \pm 0,005$	$-0,003 \pm 0,002$

Tab. 11. — Tendances de la vapeur d'eau (ppmv.an^{-1}) pour les observations et les modèles pour la longue période (1981-2004) et la courte période (1992-2004) en local (T3M) et en moyenne zonale (T2Mz). Les tendances représentent les moyennes sur 3 niveaux de pressions 100, 80 et 50 hPa. L'erreur associée aux tendances correspond à $\pm \sigma$.

différents modèles (courbes de couleurs) pour 3 niveaux de pression. L'évolution temporelle des données HALOE moyennées entre 35° et 45° N est également présentée sur cette figure en rose de 1992 à 2004. La tendance linéaire pour la courte période (1992-2004) est représentée en trait gras et la tendance linéaire sur la longue période (1981-2004) est représentée en trait fin. De plus, la Table 11 résume la comparaison des valeurs, moyennées sur les trois niveaux de pressions, des tendances calculées entre la courte et la longue période ainsi que la comparaison des tendances calculées à partir des champs locaux (T3M) et des champs zonaux (T2Mz). Les tendances dans les séries d'observations sondes entre les deux périodes sont très différentes. Alors que sur la longue période, la tendance est clairement positive, elle devient quasiment nulle sur la courte période. La tendance sur la courte période est fortement influencée par la forte rupture observée en 2001. L'effet de la limitation du domaine temporel sur l'estimation des tendances issues des séries des CCM diffère d'un modèle à l'autre. En moyenne, la restriction du domaine tend à diminuer le terme de tendance des modèles voire même à changer le signe (passage de $0,008 \pm 0,001 \text{ ppmv.an}^{-1}$ à $-0,002 \pm 0,002 \text{ ppmv.an}^{-1}$, pour la moyenne des modèles). Néanmoins, la valeur moyenne des tendances des modèles restent très faibles.

A 100 hPa, la comparaison entre les observations sondes effectuée à Boulder et les données HALOE montrent assez distinctement un biais qui varie entre de 0,1 à 1 ppmv, mais les deux jeux d'observations présentent les mêmes caractéristiques générales de variations (voir Figure 57a). A 80 hPa, les deux jeux d'observations présentent également le même comportement entre 1992 et 1997. Néanmoins, entre 1997 et 2004, nous notons une tendance positive dans les données sondes et une tendance négative dans les données HALOE [Randel et al., 2004] (voir Figure 57b). A 50 hPa, les observations HALOE présentent une assez faible variabilité et une tendance négative, alors que les observations sondes sont marquées par de grandes amplitude de variation et une tendance légèrement positive (voir Figure 57c). En moyenne sur les trois niveaux (voir Table 11), la tendance issue des observations HALOE est négative ($-0,020 \pm 0,002 \text{ ppmv.an}^{-1}$) alors que les observations sondes présentent une tendance assez faible et positive ($0,003 \pm 0,002 \text{ ppmv.an}^{-1}$). La différence des tendances entre les deux jeux d'observations a déjà été soulignée dans Randel et al. [2004] ; Chiou et al. [2006]. Généralement, le passage à l'approche zonale change très faiblement la tendance calculée dans les modèles. De plus, les valeurs des tendances

des CCMs ne sont pas en accord avec les observations. La valeur des tendances dans la MMM sous-estime très largement celle des observations HALOE (voir Table 11). Selon les résultats obtenus avec les CCM, les déviations par rapport à la moyenne zonale ne semblent pas être le facteur majeur expliquant les différences observées dans le calcul de la tendance. Ces désaccords entre les observations sont très probablement liés à la différence de mesure des instruments et à leur calibration [Kley *et al.*, 2000]. Malgré ces différences, la brusque diminution après 2001 est présente dans les deux jeux d'observations.

5.2.5.2 Cycle saisonnier

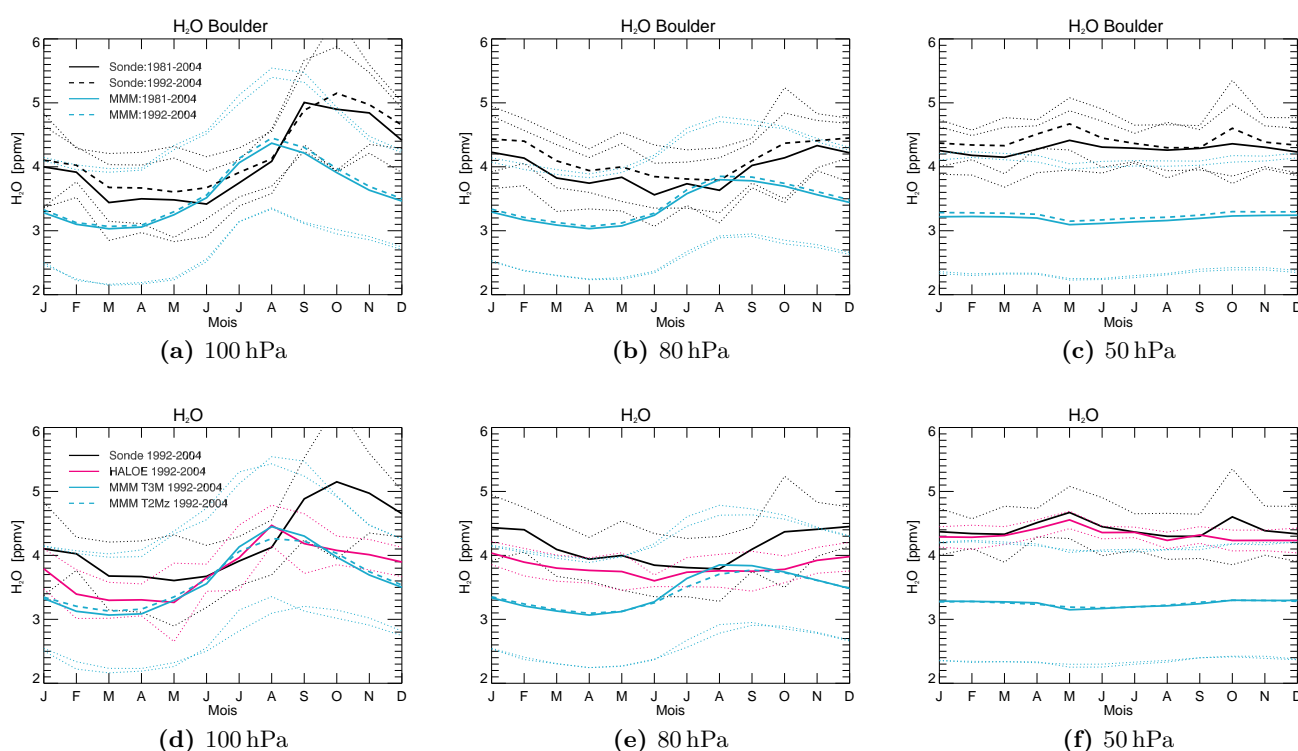


Fig. 58. — En haut, cycle saisonnier du rapport de mélange de la vapeur d'eau (ppmv) à Boulder (40° N-105° W) issu des observations sondes (noir plein 1981-2004, noir tireté 1992-2004) et de la moyenne des modèles (bleu plein 1981-2004, bleu tireté 1992-2004), (a) à 100 hPa, (b) à 80 hPa et (c) à 50 hPa. Les écarts types des observations sondes et de la MMM sont représentés respectivement en noir pointillé et en bleu pointillé. En bas, cycle saisonnier du rapport de mélange de la vapeur d'eau (ppmv) issu des observations sondes (noir plein 1992-2004), des observations HALOE (rose plein 1992-2004) et de la moyenne des modèles (bleu plein T3M 1992-2004, bleu tireté T2Mz 1992-2004) (d) à 100 hPa, (e) à 80 hPa et (f) à 50 hPa. Les écarts types des observations sondes, HALOE et de la MMM sont représentés respectivement en noir pointillé, rose pointillé et en bleu pointillé.

Les Figures 58a à 58c présentent le cycle saisonnier de la vapeur d'eau à Boulder issu des observations sondes et de la moyenne des modèles estimé sur les deux périodes considérées (1981-2004 et 1992-2004). Globalement, les caractéristiques (*i.e* amplitude et phase) du cycle saisonnier de la vapeur d'eau sont très proches pour les deux domaines temporels considérés que ce soit pour les observations ou pour la MMM. Cependant, les valeurs moyennes des cycles saisonniers sont différentes lorsque l'on

passer de la longue à la courte période. Les observations tendent à traduire de 1 et 2,5 ppmv les valeurs moyennes alors que la MMM augmente seulement de 0,5 à 1 ppmv. Cette translation positive (de la longue à la courte période) s'explique par le fait que le cycle saisonnier calculé sur la courte période a une valeur moyenne plus élevée.

Dans les Figures 58d à 58f, le cycle saisonnier de la vapeur d'eau est présenté sur la courte période pour les sondes (à Boulder) et les données HALOE (35°N - 45°N). Ces figures comparent également le cycle saisonnier issu de la moyenne des modèles à la localisation de Boulder (T3M) et en moyenne zonale entre 35° et 45°N (T2Mz). L'aspect général du cycle saisonnier est bien représenté dans les deux jeux d'observations. Nous retrouvons sur ces figures, les biais des teneurs en vapeurs d'eau observés précédemment (section 5.2.5.1) entre les deux jeux d'observations. Un décalage temporel des minima de l'ordre de 2 mois est également clairement visible à 100 hPa dans les observations HALOE. A ce niveau de pression, le cycle saisonnier des modèles est plus proche de celui des données HALOE que celui des sondes. A 80 et 50 hPa, le cycle saisonnier des deux jeux d'observations est très similaire à la fois en phase et en amplitude. La comparaison des cycles saisonniers issus des modèles à la localisation de Boulder et en moyenne zonale montre très peu de différence.

5.2.5.3 Périodogrammes

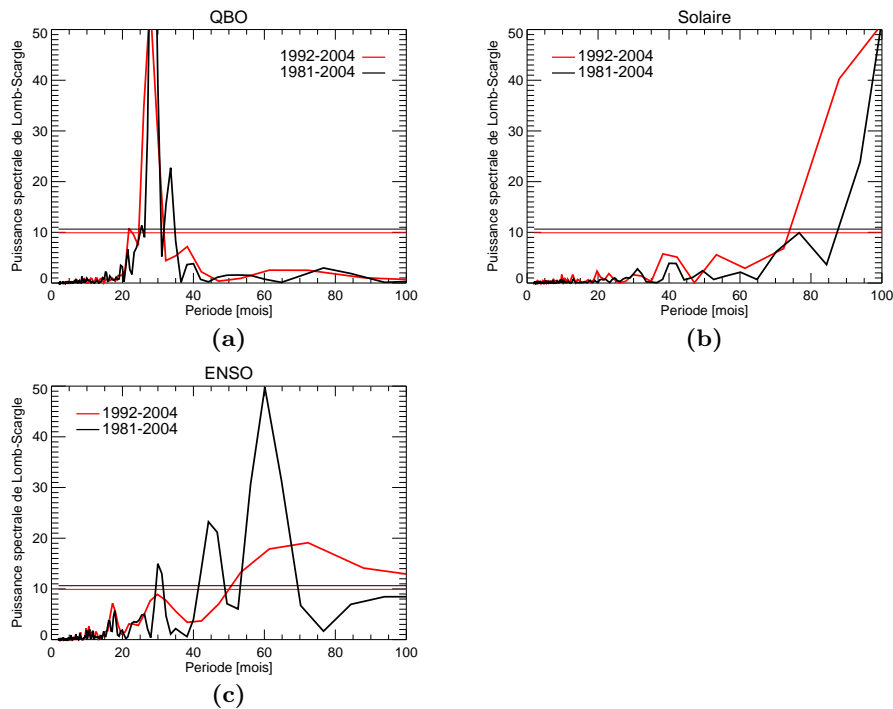


Fig. 59. – Périodogramme des forçages externes pour la période de 1981 à 2004 (en noir) et la période de 1992 à 2004 (en rouge), (a) la QBO, (b) le cycle solaire et (c) l'ENSO. Les droites horizontales représentent le seuil de significativité défini par la méthode de Lomb et Scargle.

Les Figures 59 présentent les périodogrammes des forçages externes pour la longue période (courbe

noire, 1981-2004) et la courte période (courbe rouge, 1992-2004). Les périodogrammes de la QBO (Figure 59a) sont très similaires entre les deux périodes temporelles considérées. La période à 27 mois détectée est significative. La réduction du domaine temporel tend à lisser les pics secondaires observés à 20 et 36 mois. Les périodogrammes du forçage solaire (Figure 59b) sont également assez similaires entre les deux périodes. La réduction de la période temporelle tend à élargir le pic de variabilité basse fréquence associée au cycle solaire à 11 ans. Néanmoins, il est difficile statistiquement (voir section 3.3.2) de détecter des périodes dans une série temporelle dont la longueur n'est pas le double de la période que nous souhaitons détecter. Cette faiblesse de la méthode peut perturber l'analyse spectrale en créant des pics distincts et non-significatifs, comme par exemple les deux pics à 40 et 55 mois sur la Figure 59b. Ces deux pics ne correspondent à aucune période du forçage solaire connue et sont probablement générés par la méthode en raison de la longueur de la série considérée. Sur la Figure 59c, nous notons que les détections des périodicités de l'ENSO sont très sensibles à la longueur de la série. Les périodes très marquées à 30, 45 et 60 mois de l'analyse sur la longue série apparaissent lissées lorsque l'on considère la série temporelle restreinte, à tel point que le pic à 30 mois se situe en dessous du niveau de significativité et celui à 45 mois disparaît complètement. La période détectée auparavant à 60 mois tend à être plus étendue et décalée à 70 mois dans l'analyse sur la courte série temporelle. Le domaine temporel compris entre 1992 et 2004 apparaît ainsi suffisamment long pour conserver la détection précise de la période à 27 mois de la QBO mais semble trop court pour détecter distinctement les périodes de l'ENSO et du forçage solaire.

Les Figures 60 présentent les périodogrammes des séries temporelles de la vapeur d'eau issues des observations sondes (courbe noire) et de la moyenne des modèles sans QBO (courbe verte) et avec QBO forcée (courbe rouge), pour trois niveaux de pressions (100, 80 et 50 hPa). Pour chaque série temporelle, les périodogrammes sur la longue (trait plein) et la courte (trait tireté) périodes d'analyse sont représentés sur les Figures 60. Globalement, les périodogrammes issus des observations sont assez similaires entre les deux périodes temporelles considérées. La réduction du domaine temporel tend à lisser l'amplitude du pic à 50 mois de l'ENSO et à le rendre non significatif particulièrement à 50 hPa. Dans le cas des périodogrammes issus de la moyenne des modèles, nous notons également une atténuation de l'amplitude des puissances spectrales, accompagnée d'un décalage vers les basses fréquences et cela principalement pour la moyenne des modèles avec une QBO forcée. Les périodogrammes des modèles, particulièrement pour la MMM QBO_f, ont une forme relativement proche de celle du périodogramme de l'ENSO (voir Figure 59c).

Les Figures 61 présentent les périodogrammes des séries temporelles de la vapeur d'eau pour la courte période (1992-2004) issues des observations sondes (courbe noire) et HALOE (courbe rose) ainsi que pour les séries de moyennes des modèles à la localisation de Boulder (T3M, courbe pleine) et en moyenne zonale (T2Mz, courbe tiretée). Les périodogrammes des observations HALOE montrent une période distincte et significative à 27 mois qui coïncide avec la QBO quel que soient les niveaux de pression. A 50 hPa, un pic à 40 mois, qui coïncide avec une périodicité de l'ENSO, est distinct mais non-significatif. Nous remarquons également à tous les niveaux, la présence d'un pic plus étendu autour de 60 mois mais qui reste statistiquement non significatif. Les observations HALOE étant moins

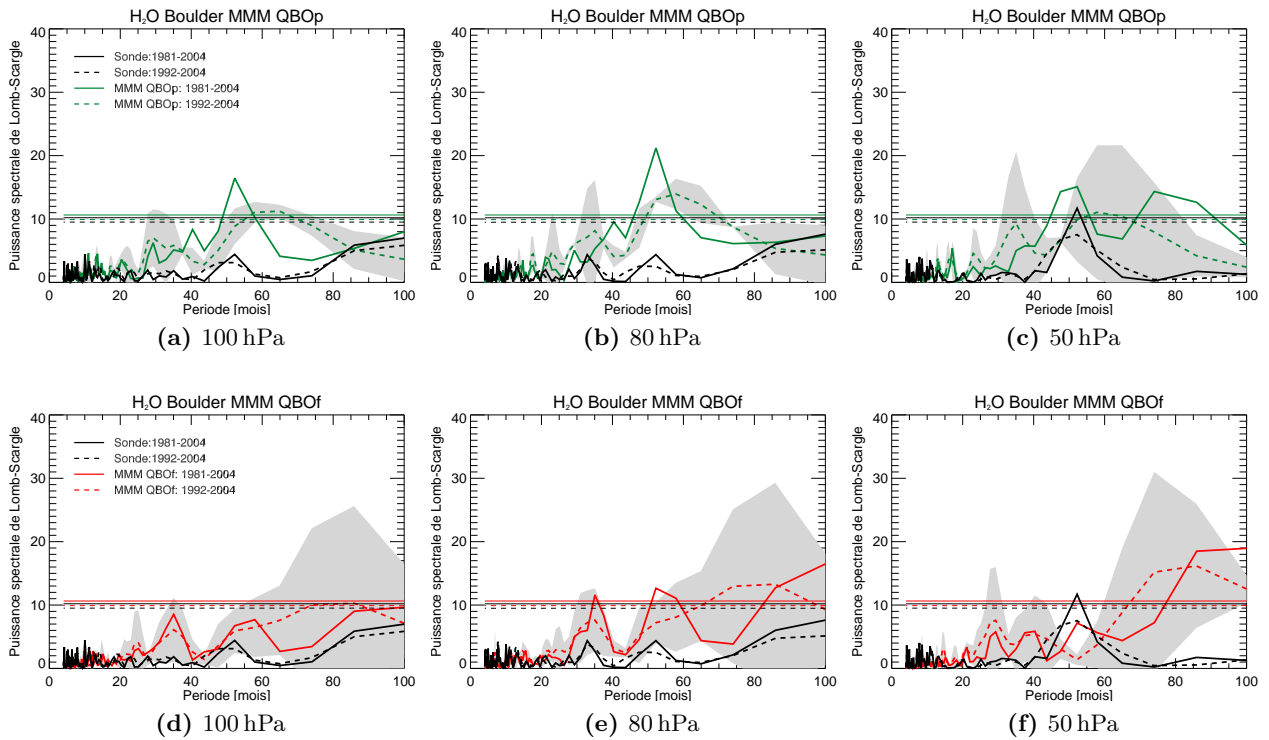


Fig. 60. — Périodogramme de Lomb et Scargle du rapport de mélange de la vapeur d'eau à Boulder à partir des observations sondes (noir) et de la moyenne des modèles sans QBO (en haut, MMM QBOp en vert) et la moyenne des modèles avec QBO forcée (en bas, MMM QBOf en rouge), à 100 hPa (à gauche), à 80 hPa (au centre) et à 50 hPa (à droite). Les courbes tiretées et pleines représentent respectivement les puissances spectrales issus des séries de la courte et de la longue période. Les zones grisées représentent les écarts types autour de la moyenne des CCM. Les droites horizontales représentent le seuil de significativité défini par la méthode de Lomb et Scargle.

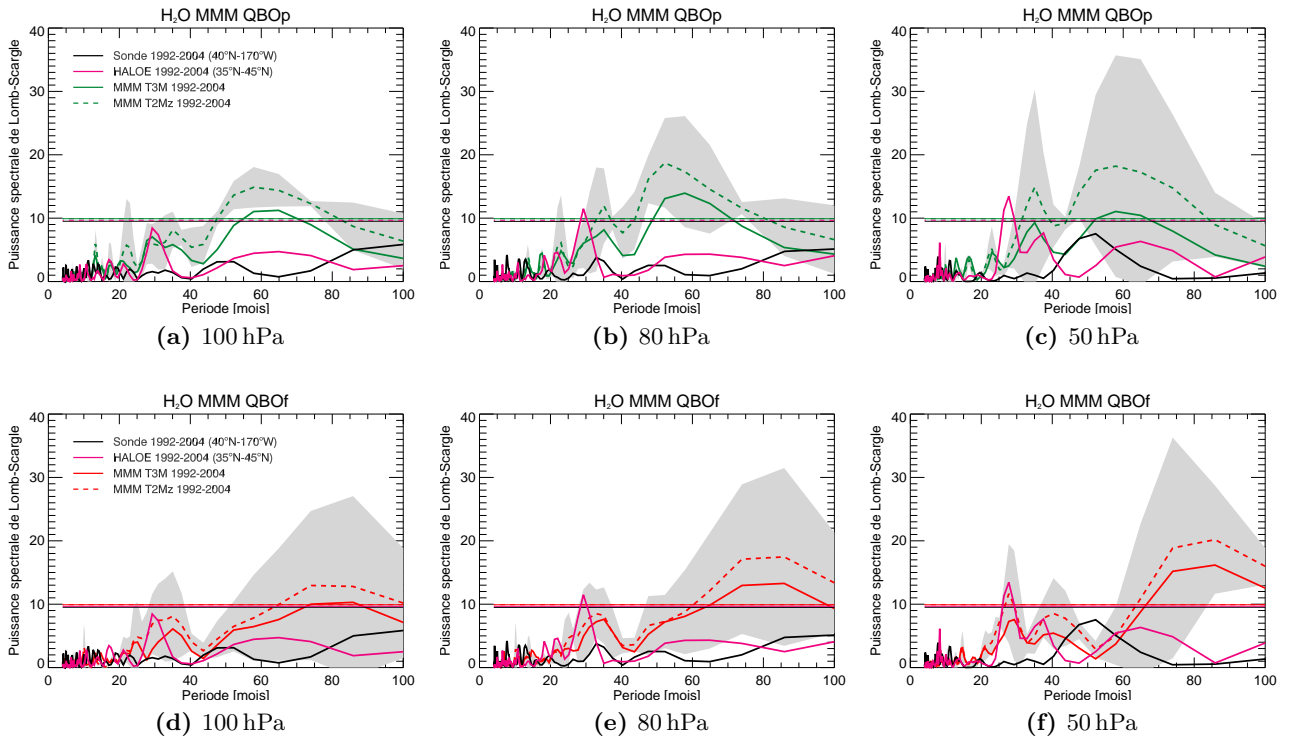


Fig. 61. — Périodogramme de Lomb et Scargle du rapport de mélange de la vapeur d'eau à partir des observations sondes (noir), des observations HALOE (rose) et de la moyenne des modèles sans QBO (en haut MMM QBOp en vert) et la moyenne des modèles avec QBO (en bas MMM QBOf en rouge), à 100 hPa (à gauche), à 80 hPa (au centre) et à 50 hPa (à droite). Pour les modèles, les courbes tiretées et pleines représentent respectivement les champs en moyenne zonale (T2Mz) et les champs à la localisation de Boulder (T3M). Les zones grisées représentent les écarts types autour de la moyenne des CCM (issu des champs zonaux). Les droites horizontales représentent le seuil de significativité défini par la méthode de Lomb et Scargle.

bruitées que les observations sondes, les pics détectés sont plus précis et significatifs. De la même façon, la moyenne zonale tend à augmenter la significativité des périodogrammes des modèles, ainsi les pics détectés à partir des champs zonaux des modèles ont tendance à être mieux définis et plus significatifs. La QBO et l'ENSO induisent des périodicités dans les modèles et les observations pour des champs zonaux. L'étude spectrale sur des champs zonaux améliore la détection des pics et la significativité.

5.2.5.4 Variabilité expliquée par les forçages externes

Données	Altitude (hPa)	Variance totale (ppmv ²)			variance désaisonnalisée (ppmv ²)			Cycle saisonnier (%)		
		1981-2004 (T3M)	1992-2004 (T3M)	1992-2004 (T2Mz)	1981-2004 (T3M)	1992-2004 (T3M)	1992-2004 (T2Mz)	1981-2004 (T3M)	1992-2004 (T3M)	1992-2004 (T2Mz)
Sondes	100	0,70	0,70		0,36	0,39		52,6	43,4	
	80	0,30	0,30		0,24	0,24		20,8	20,7	
	50	0,17	0,19		0,16	0,17		2,8	7,5	
MMM	100	0,38	0,43	0,32	0,07	0,06	0,03	82,0	86,5	89,5
	80	0,16	0,17	0,12	0,04	0,03	0,02	76,9	81,0	82,4
	50	0,03	0,03	0,02	0,01	0,02	0,01	32,6	43,5	45,9
HALOE	100			0,26			0,12			54,4
	80			0,06			0,05			18,6
	50			0,03			0,02			19,9

Tab. 12. – Variance des séries (ppmv²), variance des séries désaisonnalisées (ppmv²) et le pourcentage de variance expliquée par le cycle saisonnier pour la période de 1992-2004 et 1981-2004, pour les champs locaux (T3M) et les champs zonaux (T2Ms).

La Table 12 indique les variances totales et désaisonnalisées des séries ainsi que le pourcentage de variance expliquée par le cycle saisonnier pour les deux périodes : 1992-2004 et 1981-2004. Dans les observations sondes et les modèles, le passage de la longue à la courte période change très peu la valeur de la variance totale. Sur cette courte période, la variance totale reste donc représentative de la variance totale sur les 24 ans. En raison du très faible impact de la réduction de la durée de la série temporelle sur le cycle saisonnier (voir section 5.2.5.2), les variances des séries désaisonnalisées des deux périodes restent très semblables à tous les niveaux de pression dans les observations et dans la moyenne des modèles.

Sur la Figure 62a à 62c, le paramètre $|R^2|$ de la MLR qui permet de quantifier la part de la variabilité expliquée par les différents forçages externes sur la variabilité inter-annuelle est présenté pour la longue (L) et la courte (C) périodes. La contribution totale des forçages externes a tendance à diminuer dans les observations lorsque l'on considère la courte série temporelle. Comme nous l'avons remarqué dans la section 5.2.5.1, ceci est principalement dû à la diminution du terme de tendance. En revanche, la réduction de la durée de la série tend au contraire à augmenter la contribution de l'ENSO et de la QBO, compensant ainsi un peu la diminution du terme de tendance sur la contribution totale de la variance expliquée par les forçages externes. Les forçages externes dominants deviennent, dans la série de courte période, la QBO et l'ENSO. Dans les résultats des modèles, la réduction de la durée

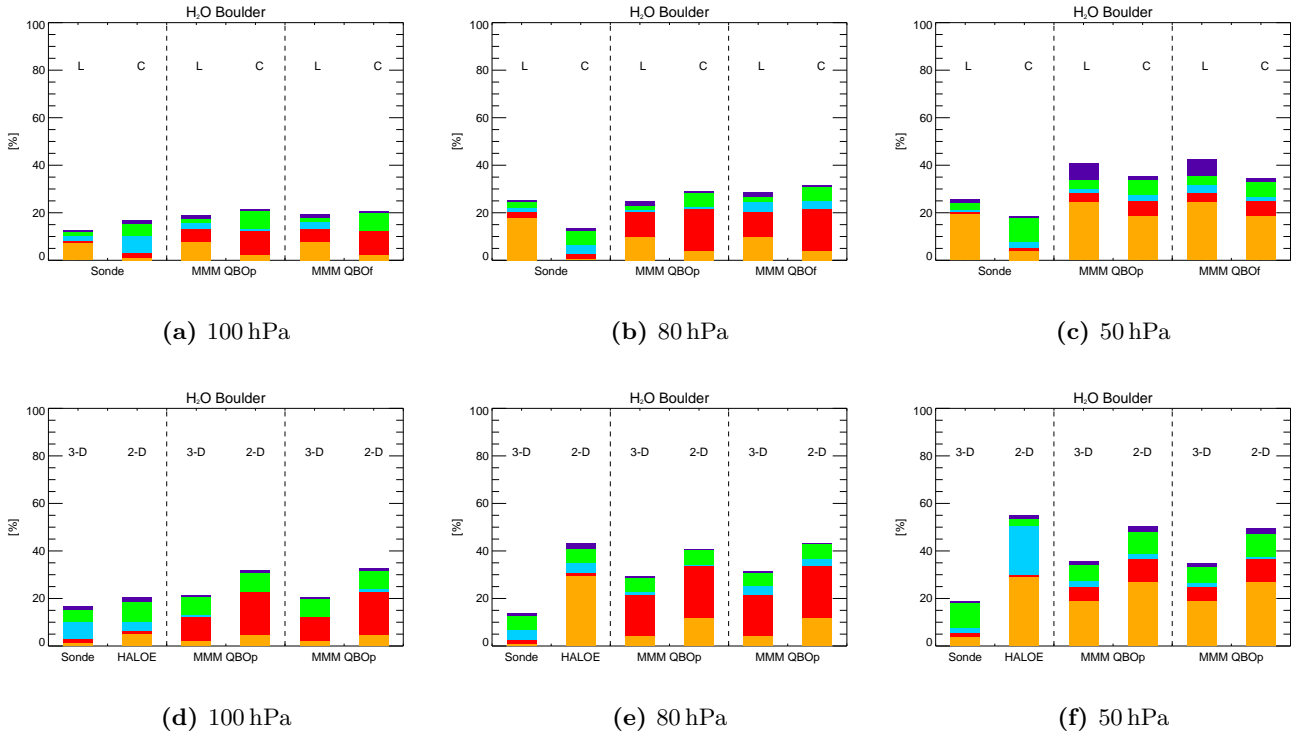


Fig. 62. — En haut, somme des valeurs absolues des contributions des forçages externes sur la variance inter-annuelle du rapport de mélange de la vapeur d'eau, (a) à 100 hPa, (b) à 80 hPa et (c) à 50 hPa ; sur les longues (L, 1981-2004) et les courtes périodes (C, 1992-2004) à Boulder pour les observations sondes, la moyenne des modèles sans QBO (MMM QBOp) et la moyenne des modèles avec une QBO forcée (MMM QBOf). En bas, somme des valeurs absolues des contributions des forçages externes sur la variance inter-annuelle du rapport de mélange de la vapeur d'eau, (d) à 100 hPa, (e) à 80 hPa et (f) à 50 hPa ; sur la courte période (1992-2004) à Boulder (3-D) et pour les moyennes zonales (2-D, entre 35° N- 45° N), pour les observations sondes, les observations HALOE, la moyenne des modèles sans QBO (MMM QBOp) et la moyenne des modèles avec une QBO forcée (MMM QBOf). La contribution de la tendance est représentée en jaune, celle du forçage solaire en rouge, celle de la QBO en bleu clair, celle de l'ENSO en vert et celle des aérosols volcaniques en bleu foncé.

de la série est aussi bien associée à la diminution du terme de tendance qu'à l'augmentation du terme solaire et de l'ENSO.

La Table 12 présente également les variances (totale et désaisonnalisée) et la proportion du cycle saisonnier pour les deux jeux d'observations (sondes et HALOE) ainsi que les moyennes des modèles à la localisation de Boulder (T3M) et en moyenne zonale (moyennées entre 35° N-45° N, T2Mz), pour la période 1992-2004. Le tableau montre de grandes différences entre les variances totales des deux jeux d'observations. En moyenne sur les trois niveaux, les variabilités totales et désaisonnalisées des données HALOE représentent respectivement 25% et 21% des variabilités totales et désaisonnalisées des observations sondes. La proportion du cycle saisonnier par rapport à la variabilité totale est assez similaire entre les deux jeux de données à 80 hPa alors qu'à 100 et 50 hPa la contribution du cycle saisonnier des données HALOE est plus importante ($\sim 11\%$) que celle des sondes. La comparaison des variances calculées à partir des séries temporelles des moyennes des modèles à la localisation de Boulder et en moyenne zonale (35° et 45° N) montre assez peu de différence. Les variances des moyennes zonales ont tendance à être légèrement inférieures comparativement à celles estimées localement. La contribution du cycle saisonnier sur la variance totale est légèrement plus élevée pour les champs zonaux par rapport aux champs locaux. Ces résultats montrent que les modèles sous-estiment la variabilité de la vapeur d'eau et qu'ils ont des difficultés à reproduire les déviations par rapport à la moyenne zonale observées entre les sondes et les données zonales d'HALOE.

Les Figures 62d à 62f présentent la part de variabilité expliquée par les forçages externes ($|R^2|$) dans les séries désaisonnalisées du rapport de mélange de la vapeur d'eau entre 1992 et 2004. Ces figures présentent l'analyse des séries de mesures sondes à Boulder (3-D), celle des données HALOE moyennées zonalement (2-D) ainsi que celle des moyennes de modèles issues des champs à la localisation de Boulder (3-D, T3M) et celle issues des champs zonaux (2-D, T2Mz). A 100 hPa, les valeurs de $|R^2|$ sont assez comparables entre les données sondes et les données HALOE. Par contre, la contribution du terme de QBO a tendance à être diminuée dans les données HALOE au profit du terme d'ENSO comparativement aux observations sondes. A 100 hPa, le terme ENSO devient donc le facteur principal ($\sim 10\%$) pour expliquer la variance dans les observations HALOE alors que la tendance et la QBO expliquent respectivement 5% et 4% de la variance inter-annuelle. Enfin, les contributions du forçage solaire et des aérosols représentent environ 1% de la variance inter-annuelle. A 80 et 50 hPa les différences de $|R^2|$ entre les deux jeux d'observations sont plus grandes. A ces niveaux d'altitudes, le paramètre $|R^2|$ des données HALOE représente entre 45 et 55% de la variabilité inter-annuelle alors qu'il ne dépasse jamais plus de 20% dans les sondes à Boulder. Ces différences sont principalement expliquées par le terme de tendance à 80 hPa et par les termes de tendance et de QBO à 50 hPa. Ces résultats reflètent les différences obtenues précédemment entre les deux jeux de données dans l'analyse de la tendance (voir section 5.2.5.1) et la détection du signal de la QBO dans les périodogrammes (voir section 5.2.5.3). A 80 hPa, la tendance devient le forçage principal pour expliquer la variance des données HALOE. A 50 hPa dans les observations HALOE, la tendance est toujours le forçage principal pour expliquer la variance avec 30% de la variance inter-annuelle, et la QBO devient le forçage secondaire avec 20% de la variance expliquée. La comparaison entre les résultats de CCM issus des

champs zonaux (2-D) et des champs locaux (3-D) présentent des valeurs de $|R^2|$ plus grandes lorsque les champs sont moyennés zonalement, ceci est expliqué par une amplification générale de chaque forçage externe.

5.3 Phénomènes de ruptures

Comme il a été souligné sur les Figures 52, l'évolution temporelle des mesures de la vapeur d'eau à Boulder montre très clairement une rupture localisée en 2001. Ainsi dans cette seconde partie, nous nous sommes intéressés à détecter et à analyser les changements abrupts (ruptures) dans les séries temporelles. Nous avons appliqué la méthode de détection de ruptures détaillée dans la section 3.4 sur des séries temporelles dont la tendance linéaire et le cycle saisonnier ont été retirés. Dans une première section, nous présentons un ajustement de la méthode justifiant le choix de la longueur de la fenêtre. Ensuite, nous appliquons notre méthode de détection de ruptures sur les séries temporelles des forçages externes et sur les observations sondes de Boulder. Dans une quatrième section, nous effectuons des tests de sensibilité (longueur de la série et approche zonale) pour pouvoir étendre l'étude aux observations satellitaires HALOE. La cinquième section présente les résultats obtenus avec la méthode de détections de ruptures sur les champs stratosphériques tropicaux du satellite HALOE. Enfin dans une dernière partie, nous nous sommes intéressés à savoir si la rupture de 2001 est induite par une réponse linéaire aux forçages externes ou si elle résulte de la variabilité interne.

5.3.1 Ajustement de la méthode de détection des ruptures

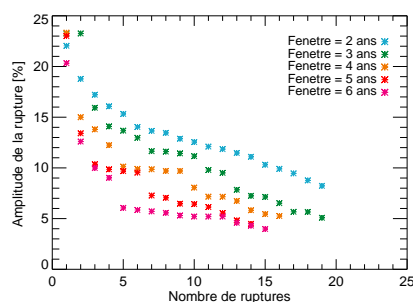


Fig. 63. — Classement décroissant des amplitudes (% de la valeur moyenne de la série) des ruptures détectées pour les observations sondes à 100 hPa. Le code de couleur représente les différentes tailles de fenêtres testées, en bleu 2 ans, en vert 3 ans, en jaune 4 ans, en rouge 5 ans et en rose 6 ans.

Puisque cette méthode repose sur l'évaluation d'un saut significatif de la moyenne entre deux fenêtres temporelles successives, il est nécessaire dans un premier temps d'ajuster leurs tailles afin de détecter au mieux les ruptures. La Figure 63 présente l'amplitude des ruptures détectées par la méthode sur les anomalies de mesures sondes de vapeur d'eau à Boulder pour différentes tailles de fenêtre ; les différentes ruptures détectées classées par amplitude décroissante. Sur cette figure, lorsque

la fenêtre temporelle de détection est petite (2 ans), les premières ruptures de grandes amplitudes sont sous-estimées car le domaine de détection ne couvre pas entièrement l'envergure du saut. C'est également le cas, lorsque la fenêtre de détection est grande (6 ans) où cette fois l'amplitude du saut est pondérée par d'autres fluctuations. La détection à partir d'une fenêtre de 3 ans permet à la fois de détecter les ruptures de grandes amplitudes et d'avoir une statistique de détection plus grande. Nous choisissons cette taille de fenêtre de détection dans l'analyse des ruptures des séries temporelles de ce chapitre.

5.3.2 Analyse des ruptures détectées dans les forçages externes

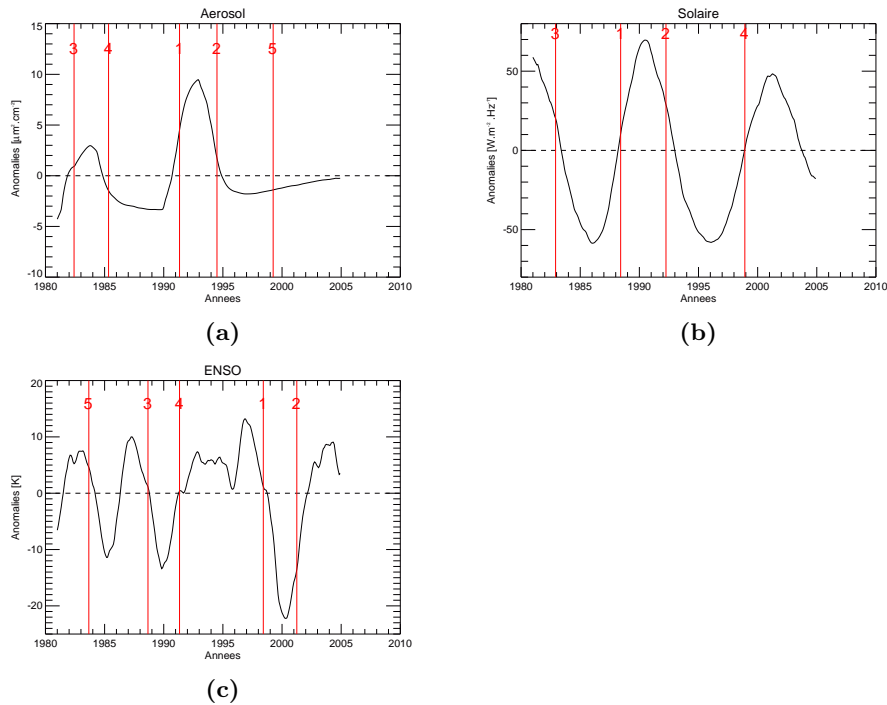


Fig. 64. — Evolution temporelle des anomalies des forçages externes entre 1981 et 2004 ; (a) Aérosols volcaniques ($\mu\text{m}^2.\text{cm}^{-2}$), (b) forçage solaire ($\text{W}.\text{m}^{-2}.\text{Hz}^{-1}$) et (c) l'ENSO (K). Les traits verticaux représentent les années où une rupture est détectée et le chiffre indique le rang de la rupture dans le classement par ordre décroissant de l'amplitude du saut.

Dans cette section, nous avons appliqué cette méthode de ruptures sur les séries temporelles des différents forçages externes de notre analyse (aérosols volcaniques, forçage solaire et ENSO). Cette première analyse permet à la fois de valider notre méthodologie sur des ruptures connues et de voir si la rupture de 2001 est visible sur les forçages externes. Pour faciliter la visualisation des ruptures et leur positionnement sur les figures, les séries temporelles des forçages externes ont été de plus lissées à l'aide d'une moyenne glissante à 3 ans. Les Figures 64 présentent les anomalies des différents forçages externes de 1981 à 2004 pour le niveau 80 hPa. Les traits verticaux représentent les différentes années où une rupture est détectée et le chiffre indique son rang en amplitude dans l'ordre décroissant. Sur

la Figure 64a pour des aérosols volcaniques, les ruptures de rang 1 et 2 sont associées à l'éruption du Mont Pinatubo en 1991, c'est à dire à la brusque augmentation juste après l'éruption et son retour à des niveaux de fond quelques années après. L'éruption El Chichon est également détectée en 1983 au rang 3 et son retour aux niveaux de fond correspond à la 4^{ème} rupture de plus forte amplitude. L'analyse du forçage solaire montre bien les sauts associés au cycle à 11 ans et le cycle solaire n°23 (maximum en 1990) est celui dont l'amplitude est la plus importante (voir Figure 64b). L'analyse de l'ENSO classe la rupture de 1998 associée au fort évènement El Niño de 1997-1998 au rang 1 et celle de 2001 au rang 2 (voir Figure 64c). L'analyse du forçage QBO ne présente pas de rupture significative. La période dite biennale de la QBO ne peut être détectée par notre méthode en raison de la taille de la fenêtre à 3 ans. Contrairement au cycle solaire (*i.e* période de 11 ans), la méthode développée dans cette thèse ne permet pas de comptabiliser les changements de régimes de la QBO comme une rupture. La rupture de 2001 apparaît, ainsi dans ces résultats, uniquement dans le signal de l'ENSO.

5.3.3 Analyse des ruptures des longues séries temporelles de vapeur d'eau à Boulder

Les Figures 65 présentent les anomalies de la vapeur d'eau de 1981 à 2004 à Boulder issues des observations sondes et des différents CCM étudiés dans cette thèse (CCSRNIES, CMAM, LMDz-REPROBUS, ULAQ et SOCOL) et ainsi que le positionnement temporel et le classement des ruptures détectées. Sur la Figure 65a, la rupture de rang 1 (amplitude du saut la plus grande) est détectée dans les observations sondes à la fin de l'année 2001. Cette rupture est très probablement associée à celle de 2001 décrite dans la littérature (voir la section 5.1.3). La rupture de rang 2 se situe à la fin de l'année 1997 et elle concorde avec le fort évènement El niño de 1997-1998 [Kley *et al.*, 2000; Fueglistaler and Haynes, 2005]. Les 3^{ème} et 4^{ème} ruptures détectées sont très certainement liées à l'éruption de Mont Pinatubo en 1991 qui a fortement perturbé la quantité de vapeur d'eau sur une période de 5 à 10 ans [Dameris *et al.*, 2005]. En effet, suite à l'éruption en 1991, une grande quantité d'aérosols volcaniques a été injectée dans la stratosphère qui a augmenté la température et donc humidifié la stratosphère [Fueglistaler and Haynes, 2005; Austin *et al.*, 2007]. La rupture classée au rang 4 est ainsi associée à la brusque augmentation de la vapeur d'eau en 1991 tout de suite après l'éruption. La rupture classée au rang 3 est cette fois associée au retour à un niveau de fond 2-3 ans après l'éruption. Dans le cas de l'éruption d'El Chichon en 1982, nous détectons uniquement la rupture associée au retour au niveau de fond car la rupture en 1982 tout de suite après l'éruption se trouve en dehors de notre domaine d'analyse (juillet 1982-juillet 2003).

Les Figures 65b à 65f montrent les détections à partir des séries temporelles de vapeur d'eau des différents modèles. Les amplitudes de variations des anomalies sont très différentes d'un modèle à l'autre et sont beaucoup plus faibles que les observations sondes. Généralement le nombre de ruptures détectées est moindre dans les résultats de modèles par rapport aux observations sondes. La rupture de 2001 n'apparaît pas dans les 5 plus grandes ruptures détectées dans les séries des modèles à l'exception du modèle CCSRNIES pour qui cette rupture est classée au rang 3 mais avec une amplitude 5 fois

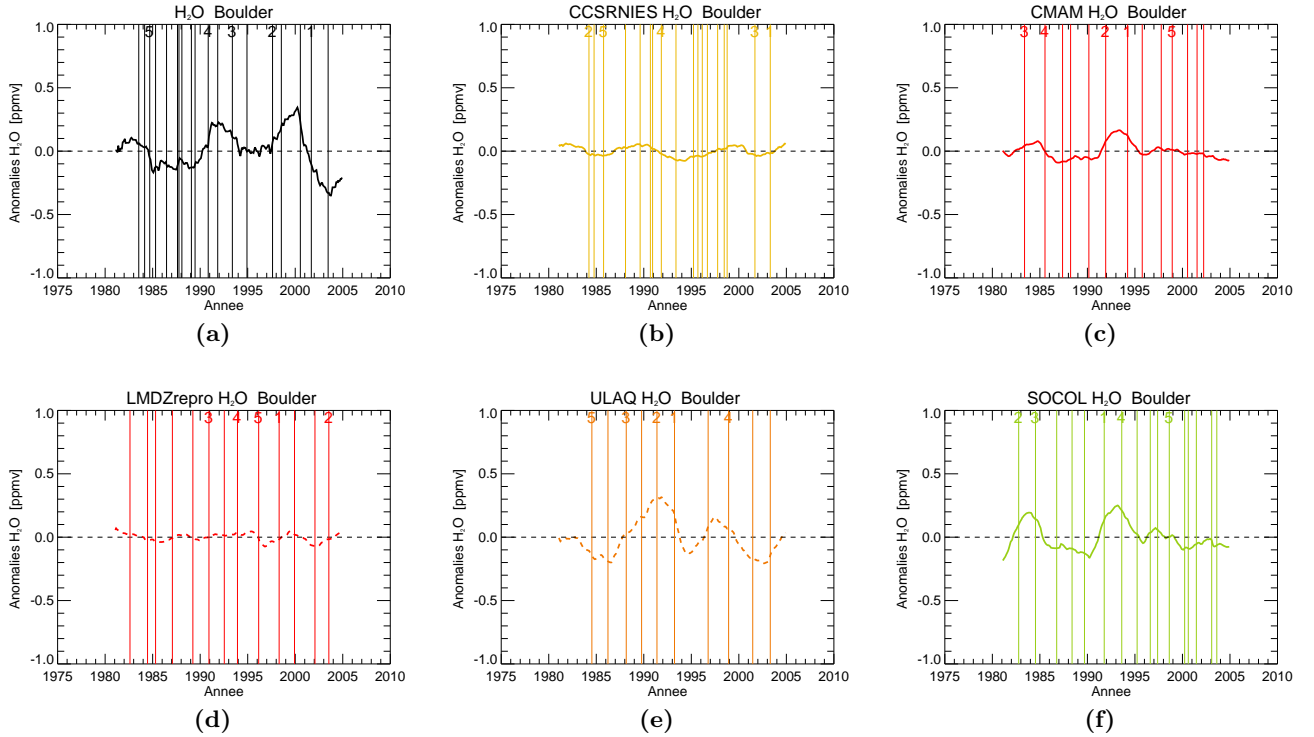


Fig. 65. — Evolution temporelle des anomalies de vapeur d'eau (ppmv) entre 1981 et 2004 à 80 hPa à Boulder; (a) pour les observations sondes, (b) pour le CCM CCSRNIIES, (c) pour le CCM CMAM, (d) pour le CCM LMDz-REPROBUS, (e) pour le CCM SOCOL et (f) le CCM ULAQ. Les traits verticaux représentent les années où une rupture est détectée et le chiffre indique le rang de la rupture dans le classement par ordre décroissant de l'amplitude du saut

plus faible que dans les observations sondes. Les brusques augmentations et diminutions associées aux éruptions volcaniques et particulièrement à celle du Mont Pinatubo sont détectées et classées parmi les plus grandes dans les modèles ULAQ, CMAM et SOCOL. Ces ruptures sont également détectées par CCSRNIIES et LMDz-REPROBUS mais elles sont associées à des amplitudes beaucoup plus faibles et donc pour des rangs plus éloignés. La rupture liée au fort événement ENSO de 1997-1998 est détectée et classée au rang 1 dans la série du CCM LMDz-REPROBUS alors que son amplitude est 5 fois plus faible que celle détectée dans les observations sondes. Cette rupture est également détectée dans les séries des autres CCM mais à des amplitudes correspondant à des rangs inférieurs.

Les Figures 66a, 66b et 66c présentent l'amplitude des ruptures détectées que nous avons classé par ordre décroissant d'amplitude pour 3 niveaux de pression (100, 80 et 50 hPa) pour les observations sondes (courbe noire), la moyenne des CCM (MMM, courbe bleue), la moyenne des CCM sans QBO (QBOp, courbe verte) et la moyenne des CCM avec une QBO forcée (QBOf, courbe rouge). Cette figure montre clairement que les amplitudes des ruptures des séries d'observations sondes sont généralement deux fois plus grandes que celles des séries des modèles quel que soit le niveau de pressions. Le nombre de ruptures issues des séries d'observations est généralement plus important que celui de la série de

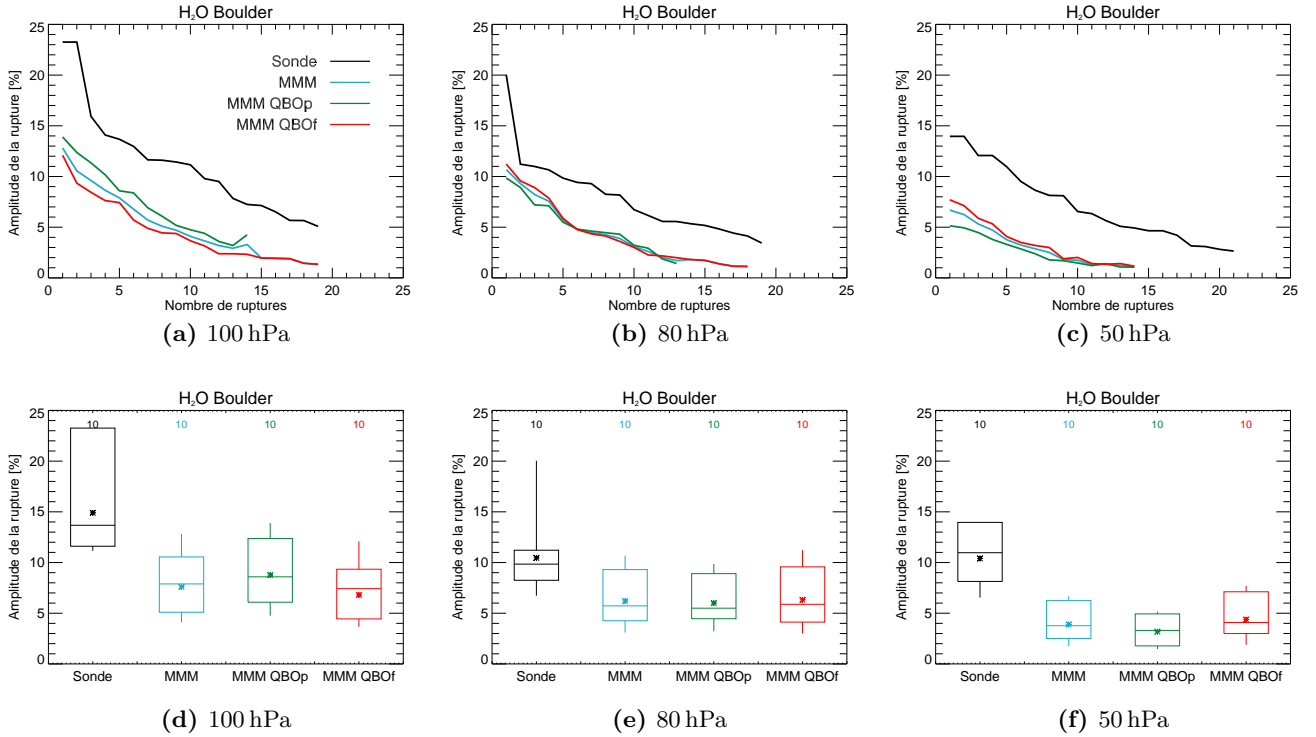


Fig. 66. — En haut, classement par ordre décroissant des amplitudes (% de la valeur moyenne de la série) des ruptures détectées pour la période 1981-2004 à Boulder, (a) à 100 hPa, (b) à 80 hPa et (c) à 50 hPa. En bas, diagramme en boîte pour les 10 ruptures détectées de plus fortes amplitudes, (d) à 100 hPa, (e) à 80 hPa et (f) à 50 hPa. Les observations sont représentées en noir, la moyenne des modèles (MMM) en bleu, la moyenne des modèles sans QBO (MMM QBOp) en vert et la moyenne des modèles avec une QBO forcée (MMM QBOf) en rouge.

la moyenne des CCM. Néanmoins, pour la MMM QBOf le nombre de ruptures est assez comparable à 100 et 80 hPa. La distribution des amplitudes des ruptures est homogène et régulière à la fois dans les observations sondes et les modèles à l'exception des très grandes ruptures détectées dans les séries d'observations qui se démarquent particulièrement à 100 et 80 hPa. L'amplitude des ruptures décroît légèrement quand l'altitude augmente, que ce soit dans les séries issues des observations sondes ou des modèles. Les Figures 66a, 66b et 66c montrent également que la distribution des amplitudes des ruptures dans les séries issues des modèles avec ou sans QBO sont assez similaires suggérant que la QBO n'est pas un processus amplifiant les phénomènes de rupture.

Pour quantifier les distributions des amplitudes de ruptures détectées, les Figures 66d, 66e et 66f présentent les diagrammes en boîte des 10 plus grandes ruptures. La valeur moyenne des amplitudes des ruptures dans les séries d'observations sondes est presque deux fois plus grande que celle des modèles. Généralement, la distribution des amplitudes de rupture dans les séries d'observations s'étend sur une gamme d'amplitudes plus importante que dans les CCM et cela particulièrement à 100 hPa.

5.3.4 Tests de sensibilité

Dans cette partie, nous avons testé l'effet de la longueur de la série temporelle ainsi que l'approche zonale sur l'analyse des ruptures de la vapeur d'eau à Boulder.

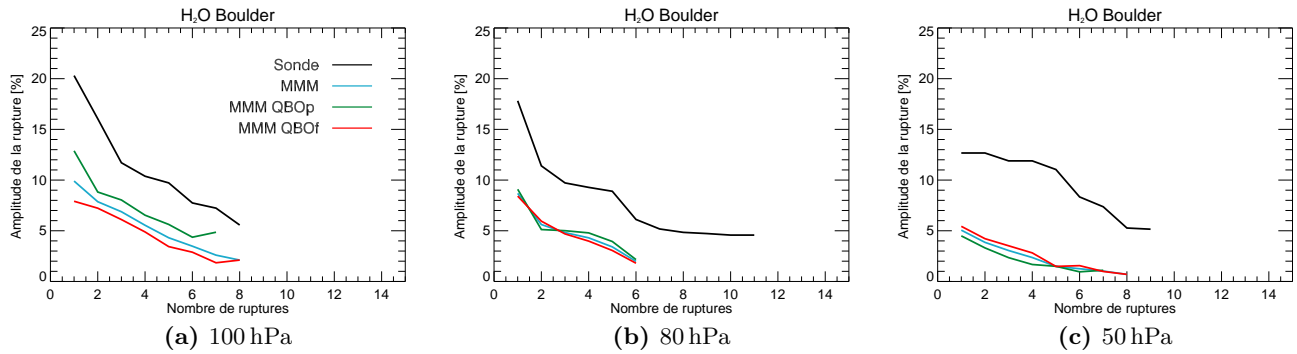


Fig. 67. — Classement par ordre décroissant des amplitudes (% de la valeur moyenne de la série) des ruptures détectées pour la période 1992-2004 à Boulder, (a) à 100 hPa, (b) à 80 hPa et (c) à 50 hPa. Les observations sondes sont représentées en noir, la MMM en bleu, la MMM QBOP en vert et la MMM QBOF en rouge.

Les Figures 67 présentent les amplitudes des ruptures détectées à partir des séries des observations sondes et des moyennes de modèles (MMM, MMM QBOP, MMM QBOF) à Boulder sur les séries de courte période (1992-2004) que nous avons classées par ordre d'amplitude décroissante. Ces figures sont à comparer avec les Figures 66a à 66c qui présentent les mêmes diagnostics sur la longue période de mesures à Boulder. Les résultats sont très similaires. L'amplitude (exprimée en pourcentage de la valeur moyenne de la série) des ruptures détectées a légèrement diminué dans l'analyse des séries de plus courte durée et cette diminution correspond à la différence des moyennes temporelles entre les deux séries. Comme on pouvait s'y attendre, le nombre de ruptures a également diminué puisque la fenêtre temporelle est plus réduite.

Les Figures 68 présentent les amplitudes des ruptures détectées dans les séries de mesures HALOE et dans les résultats de modèles (MMM, MMM QBOP, MMM QBOF) moyennées entre 35° et 45° N (T2Mz) sur la courte période (1992-2004). Globalement, les amplitudes des ruptures détectées dans les données HALOE sont clairement plus faibles et moins nombreuses que dans la série de mesures sondes à Boulder (voir Figures 67). Leurs distributions en taille et en nombre se rapprochent beaucoup plus de celles détectées à partir des modèles. Les ruptures détectées à partir des champs zonaux (Figures 68) dans les modèles montrent très peu de changements par rapport aux champs locaux à Boulder (voir Figures 67).

5.3.5 Phénomène de ruptures dans les régions tropicales

L'analyse effectuée dans [Randel *et al.*, 2006] montre que la forte rupture de 2001 observée précédemment dans la longue série de mesures à Boulder est également visible dans les régions tropicales

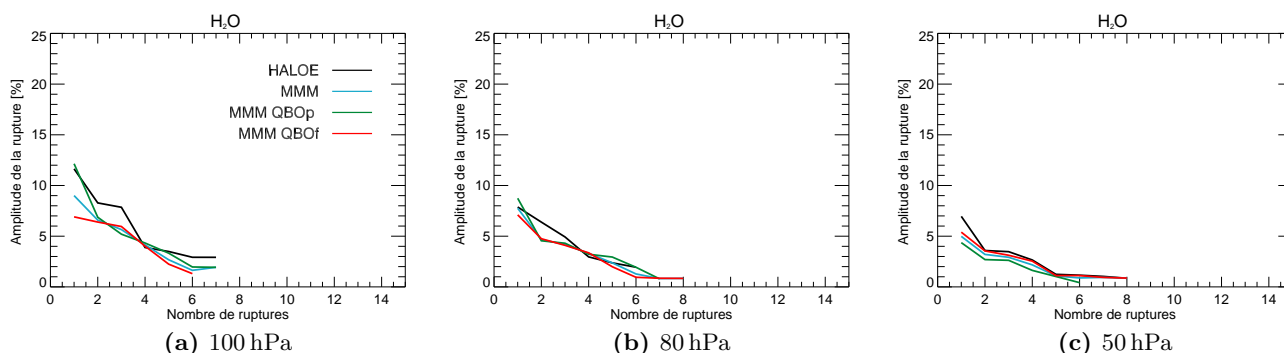


Fig. 68. — Classement par ordre décroissant des amplitudes (% de la valeur moyenne de la série) des ruptures détectées pour la période 1992-2004, (a) à 100 hPa, (b) à 80 hPa et (c) à 50 hPa. Les observations HALOE sont représentées en noir, la MMM (T2Mz) en bleu, la MMM (T2Mz) QBOp en vert et la MMM (T2Mz) QBOf en rouge.

dans divers jeux de données d'espèces chimiques stratosphériques telles que la vapeur d'eau, l'ozone, la température et la vitesse verticale résiduelle. Ainsi dans cette section, nous avons étendu l'analyse des détections de ruptures de la vapeur d'eau à Boulder, aux régions tropicales et à d'autres champs stratosphériques. Nous avons donc appliqué la méthode de détection de ruptures mis en place sur les observations HALOE pour la vapeur d'eau, l'ozone, la température et le méthane dans la bande tropicale comprise entre 15°N - 15°S . Les observations HALOE ne fournissent pas les mesures de la vitesse verticale résiduelle, donc pour pouvoir disposer d'une représentation relative du transport nous avons choisi d'étudier les séries temporelles du méthane qui est un bon traceur du transport à grande échelle.

5.3.5.1 Vapeur d'eau

Sur la Figure 69a, la rupture de 2001 est effectivement détectée dans les séries temporelles de la vapeur d'eau aux tropiques des observations HALOE. Notre méthode de rupture la classe d'ailleurs comme la rupture de plus forte amplitude. Les séries de vapeur d'eau des modèles ULAQ et LMDz-REPROBUS montrent également une brusque chute de leur rapport de mélange en 2001 apparaissant respectivement aux rangs 1 et 5. Pour les autres modèles, les ruptures détectées en 2001 correspondent soit à une diminution de très faible amplitude (CCSRNIES) soit à une augmentation (SOCOL et CMAM).

La distribution des amplitudes des ruptures de la vapeur d'eau des régions tropicales est présentée sur les Figures 70a, 70b et 70c et les diagrammes en boîte de ces distributions sont présentés sur les Figures 70d, 70e et 70f. Globalement, les amplitudes des ruptures sont plus importantes dans les régions tropicales qu'aux moyennes latitudes de l'hémisphère nord (voir Figures 68). Le nombre de détections dans les séries des modèles est plus important que dans les observations et particulièrement en dessous de 80 hPa. L'amplitude des ruptures détectées est généralement plus élevée dans les observations HALOE que dans la moyenne des modèles. Néanmoins, à 100 hPa, les amplitudes de ruptures dans

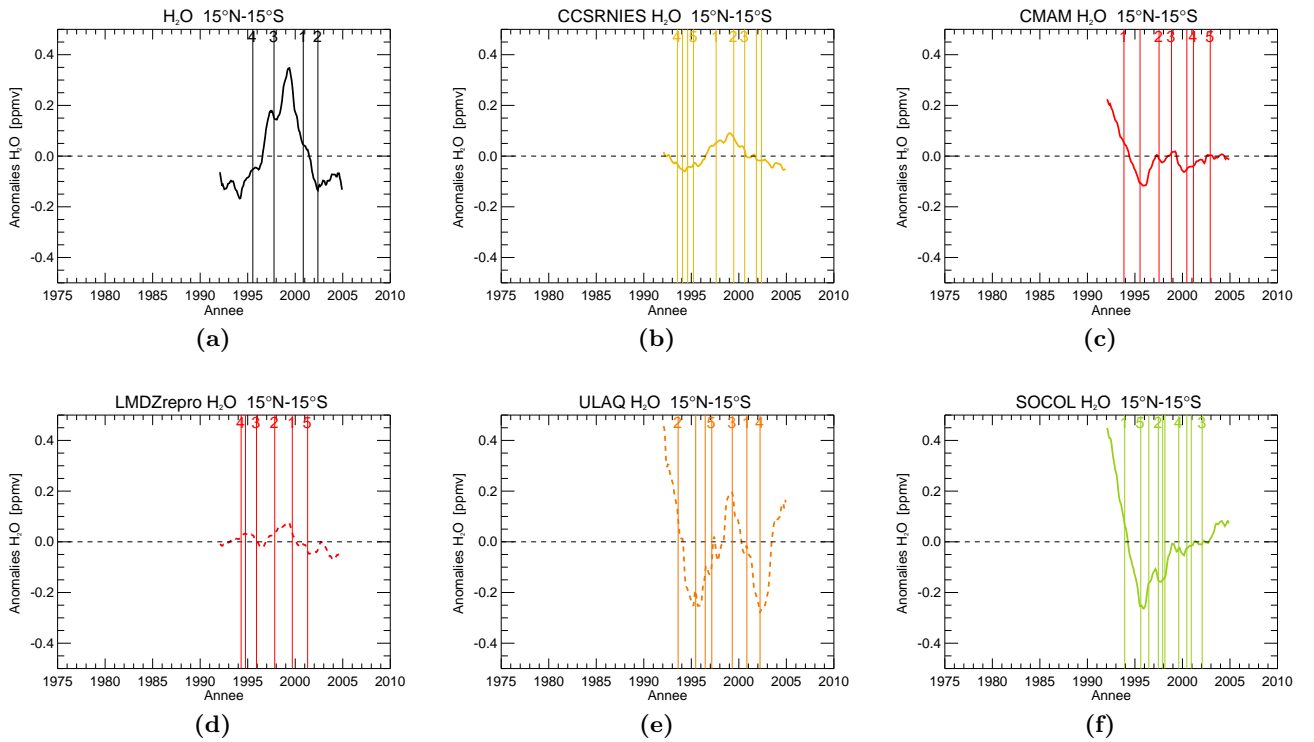


Fig. 69. — Evolution temporelle des anomalies de vapeur d'eau (ppmv) entre 1992 et 2004 à 80 hPa aux tropiques ; (a) les observations HALOE, (b) le CCM CCSRNIES, (c) le CCM CMAM, (d) le CCM LMDz-REPROBUS, (e) le CCM SOCOL et (f) le CCM ULAQ. Les traits verticaux représentent les années où une rupture est détectée et le chiffre indique le rang de la rupture dans le classement par ordre décroissant de l'amplitude du saut.

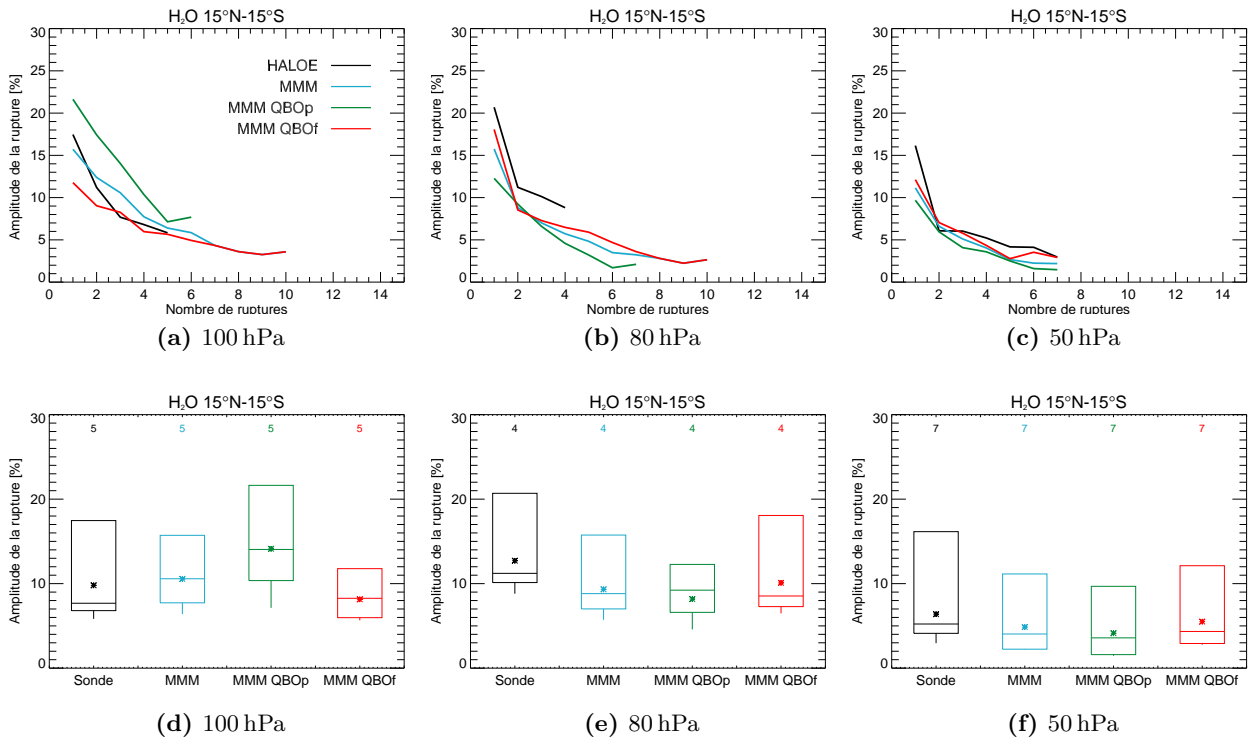


Fig. 70. — En haut, classement par ordre décroissant des amplitudes (% de la valeur moyenne de la série) des ruptures détectées pour la période 1992-2004 aux tropiques pour la vapeur d'eau, (a) à 100 hPa, (b) à 80 hPa et (c) à 50 hPa. En bas, diagrammes en boîte pour les ruptures détectées de plus fortes amplitudes pour la vapeur d'eau aux tropiques, (d) à 100 hPa, (e) à 80 hPa et (f) à 50 hPa. Les observations HALOE sont représentées en noir, la MMM en bleu, la MMM QBOp en vert et la MMM QBOf en rouge.

la moyenne des modèles sans QBO sont plus grandes que dans les observations HALOE. Elles sont également bien supérieures à celles détectées dans la moyenne des modèles avec QBO forcée. Dès 80 hPa, ces caractéristiques s'inversent et les ruptures de plus grandes amplitudes sont détectées dans les observations HALOE puis dans la moyenne des modèles avec QBO forcée. Les distributions des amplitudes des plus fortes ruptures entre les différents jeux de données sont assez étendues et évoluent d'un niveau de pression à l'autre (Figures 70d à 70f). A 100 hPa, la valeur moyenne de la distribution de la MMM QBOp est plus élevée que les observations HALOE mais l'étendue de la distribution est très comparable à celle des observations HALOE. A 80 hPa, les distributions de la MMM QBOf sont très proches de celles des observations HALOE avec une valeur moyenne légèrement plus faible. A 50 hPa, la distribution des amplitudes des observations HALOE est plus étendue qu'aux niveaux inférieurs et tend à être également plus étendue que celles des MMM.

5.3.5.2 Ozone

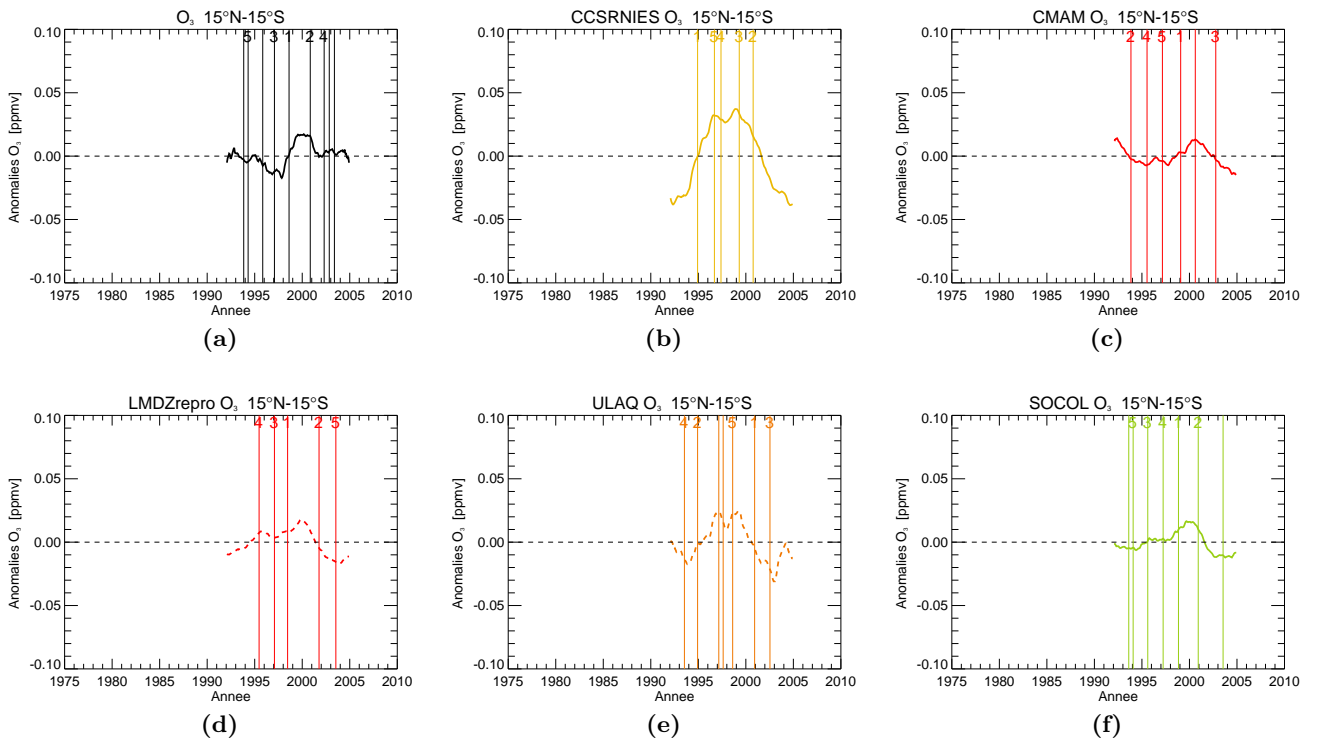


Fig. 71. — Evolution temporelle des anomalies d'ozone (ppmv) entre 1992 et 2004 à 80 hPa aux tropiques ; (a) les observations HALOE, (b) le CCM CSRNIES, (c) le CCM CMAM, (d) le CCM LMDz-REPROBUS, (e) le CCM Socol et (f) le CCM ULAQ. Les traits verticaux représentent les années où une rupture est détectée et le chiffre indique le rang de la rupture dans le classement par ordre décroissant de l'amplitude du saut.

La série temporelle du rapport de mélange d'ozone des données HALOE aux tropiques montre deux ruptures majeures (voir Figure 71a). La première rupture de plus forte amplitude est détectée en 1998 et coïncide avec le fort évènement de l'ENSO de 1997-1998. La deuxième rupture est détectée

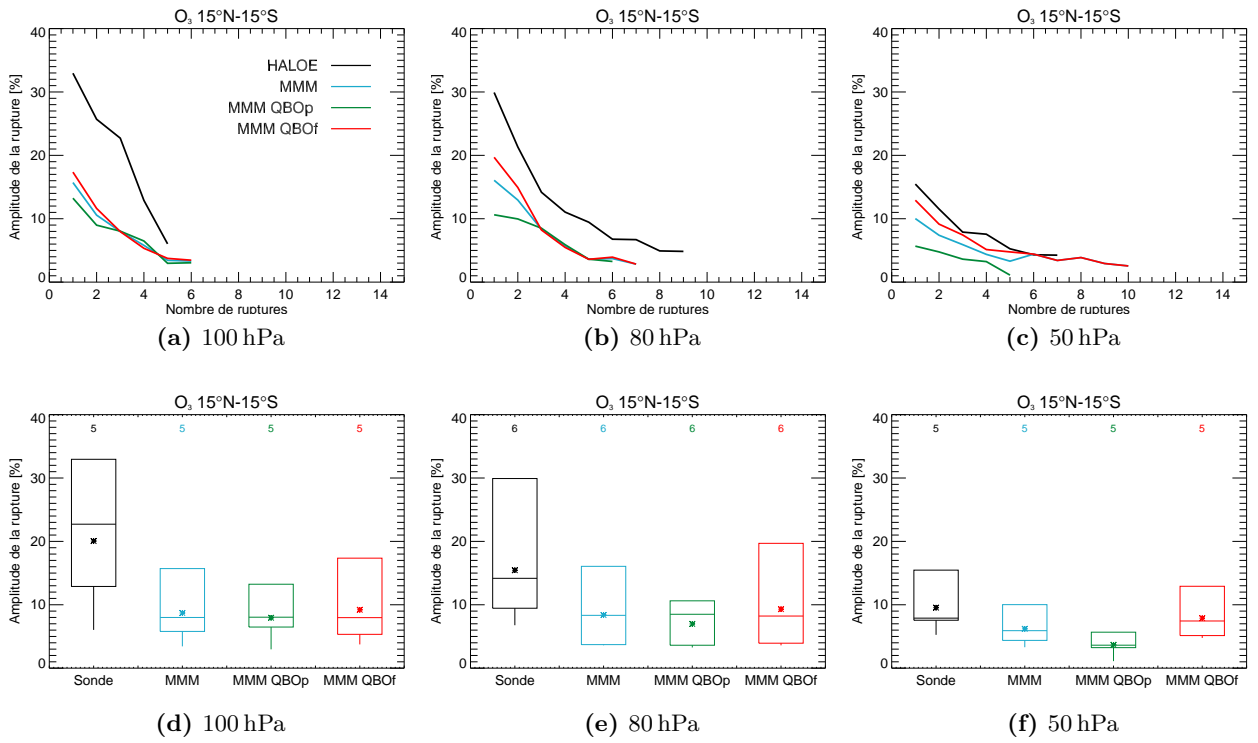


Fig. 72. — En haut, classement par ordre décroissant des amplitudes (% de la valeur moyenne de la série) des ruptures détectées d’ozone pour la période 1992-2004 aux tropiques, (a) à 100 hPa, (b) à 80 hPa et (c) à 50 hPa. En bas, diagrammes en boîte pour les ruptures détectées de plus fortes amplitudes pour l’ozone aux tropiques, (d) à 100 hPa, (e) à 80 hPa et (f) à 50 hPa. Les observations HALOE sont représentées en noir, la MMM en bleu, la MMM QBOp en vert et la MMM QBOf en rouge.

en 2001 et est associée comme pour la vapeur d'eau à une diminution. Dans certains modèles, comme LMDz-REPROBUS et SOCOL (voir Figure 71d et 71f), ces deux ruptures sont bien reproduites. Pour d'autres modèles comme CCSRNIES et ULAQ (voir Figure 71b et 71e), seule la rupture de 2001 est détectée sur les séries temporelles.

L'amplitude des ruptures détectées dans les séries d'observations HALOE est plus importante que dans les MMM (voir Figure 72a, 72b et 72c). A 50 hPa, les amplitudes des plus grandes ruptures montrent une forte diminution dans les observations. Le niveau moyen des plus grandes amplitudes détectées dans les modèles reste assez similaire quel que soit le niveau d'altitude considérée. La distribution des amplitudes dans les deux types de configuration de modèle (avec et sans QBO) est assez similaire à 100 hPa puis diverge pour les plus grandes amplitudes dans les niveaux supérieurs. A 80 et 50 hPa, les modèles avec une QBO forcée ont ainsi tendance à amplifier les grandes ruptures. Les diagrammes en boîte (voir Figure 72d, 72e et 72f) montrent que la distribution des amplitudes est plus étendue dans les observations que dans les modèles et qu'elle a tendance à se compacter avec l'altitude dans tous les jeux de données (observations et modèles).

5.3.5.3 Température

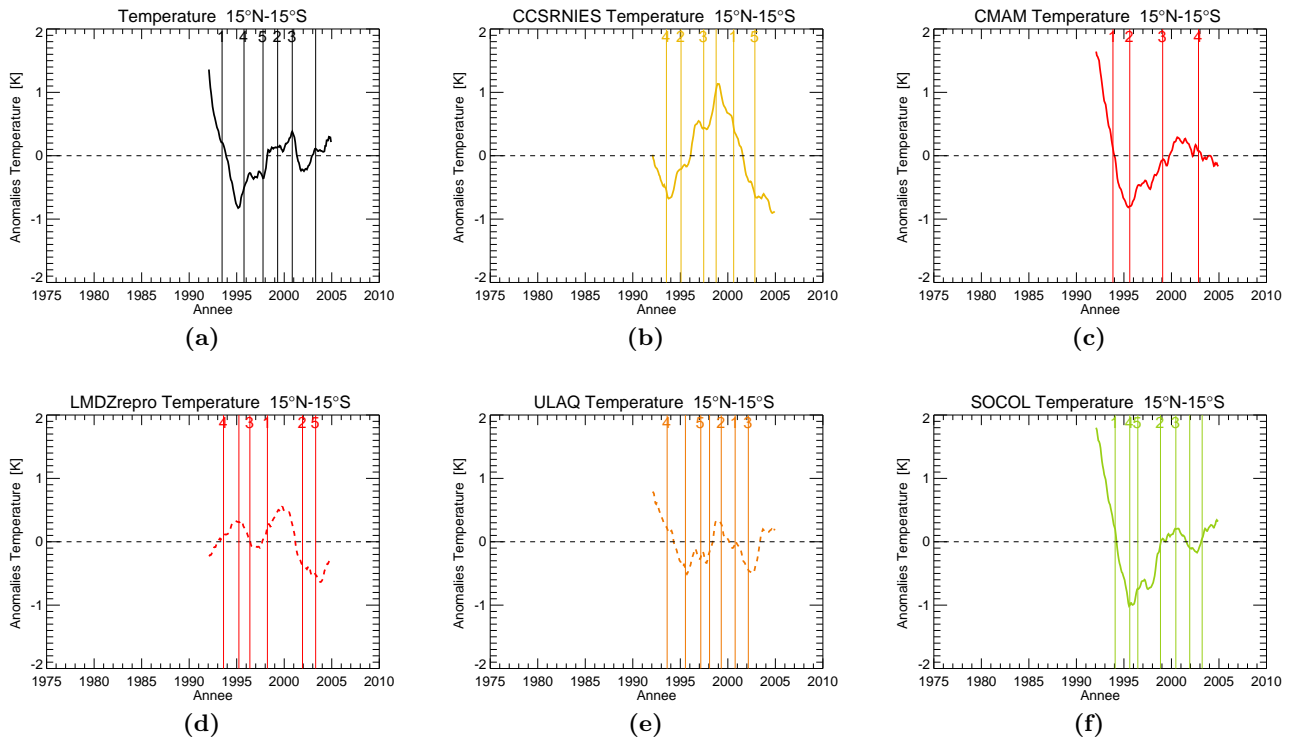


Fig. 73. — Evolution temporelle des anomalies de température (K) entre 1992 et 2004 à 80 hPa aux tropiques ; (a) les observations HALOE, (b) le CCM CSRNIES, (c) le CCM CMAM, (d) le CCM LMDz-REPROBUS, (e) le CCM SOCOL et (f) le CCM ULAQ. Les traits verticaux représentent les années où une rupture est détectée et le chiffre indique le rang de la rupture dans le classement par ordre décroissant de l'amplitude du saut.

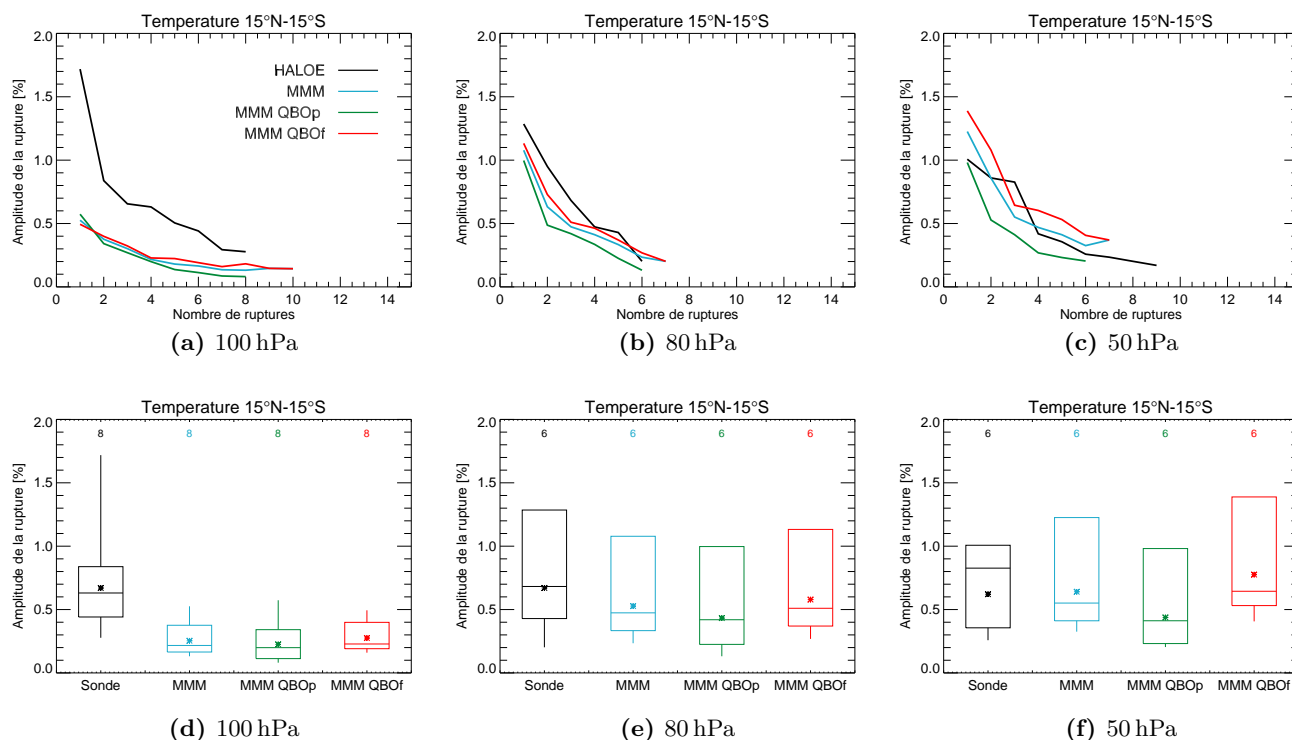


Fig. 74. — En haut, classement par ordre décroissant des amplitudes (% de la valeur moyenne de la série) des ruptures détectées de température pour la période 1992-2004 aux tropiques, (a) à 100 hPa, (b) à 80 hPa et (c) à 50 hPa. En bas, diagrammes en boîte pour les ruptures détectées de plus fortes amplitudes pour la température aux tropiques, (d) à 100 hPa, (e) à 80 hPa et (f) à 50 hPa. Les observations HALOE sont représentées en noir, la MMM en bleu, la MMM QBOp en vert et la MMM QBOf en rouge.

Dans les régions tropicales, la série temporelle des températures des observations HALOE (voir Figure 73a) est marquée par une première grande rupture en 1993 qui est associée à l'éruption du Mont Pinatubo et plus particulièrement à sa deuxième phase. En effet, l'éruption volcanique en 1991 a eu pour effet d'augmenter temporairement les températures dans la basse stratosphère puis de les diminuer quelques années plus tard. La rupture de 2001 est détectée dans cette série temporelle comme étant la troisième plus grande rupture. Certains modèles (CCSRNIES, LMDz-REROBUS et ULAQ) (voir Figures 73b à 73f) semblent également reproduire cette rupture de la température en 2001 mais avec une amplitude variant considérablement d'un modèle à l'autre.

Sur les Figures 74a à 74c, les modèles et les observations détectent le même nombre de ruptures sauf à 50 hPa où le nombre de ruptures détectées dans les observations est plus grand que dans les CCM. A 100 hPa, l'amplitude des ruptures est plus importante dans les observations que dans les modèles. Ces caractéristiques tendent à s'inverser quand l'altitude augmente, et l'écart entre les modèles et les observations HALOE diminue. Les modèles avec QBO ont tendance à amplifier l'amplitude des grandes ruptures à 50 hPa. Les distributions des amplitudes des ruptures sont généralement assez compactes à 100 hPa et deviennent plus étendues avec l'altitude (voir Figure 74d à 74f).

5.3.5.4 Méthane

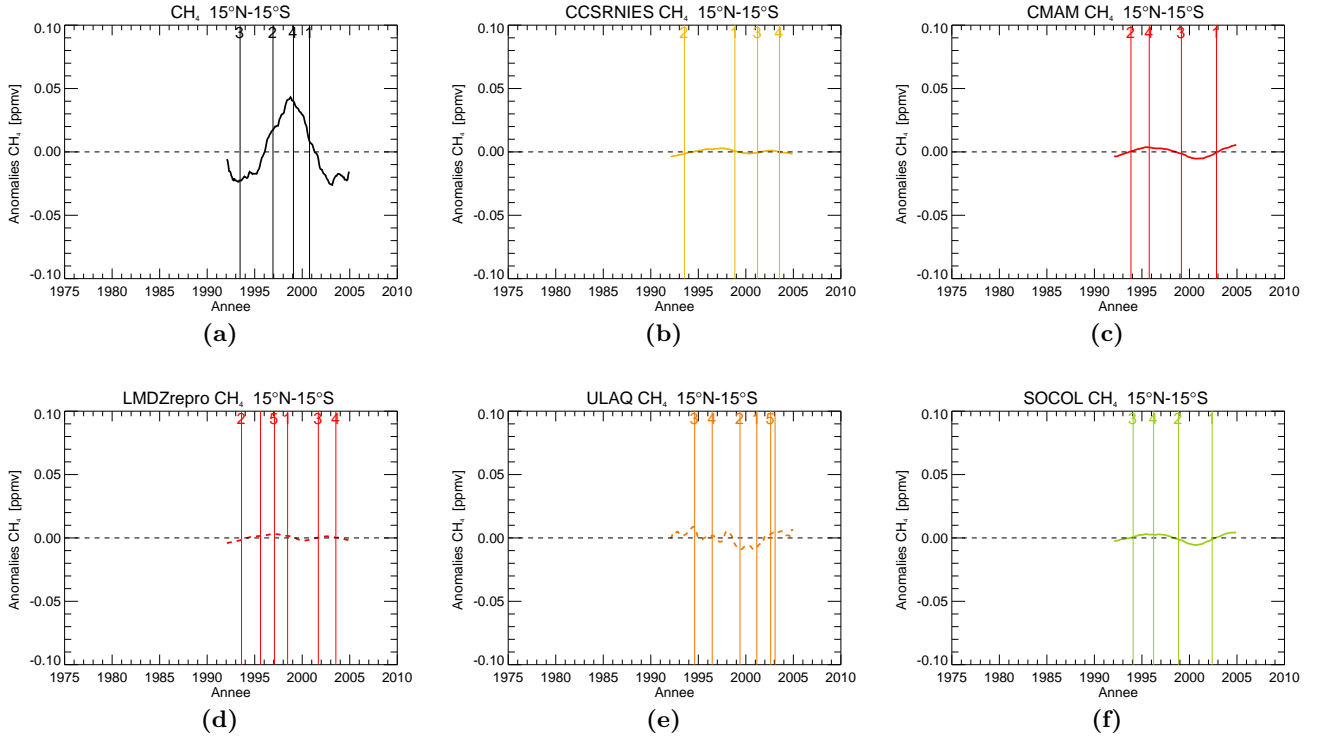


Fig. 75. — Evolution temporelle des anomalies de méthane (ppmv) entre 1992 et 2004 à 80 hPa aux tropiques ; (a) les observations HALOE, (b) le CCM CSRNIES, (c) le CCM CMAM, (d) le CCM LMDz-REPROBUS, (e) le CCM SOCOL et (f) le CCM ULAQ. Les traits verticaux représentent les années où une rupture est détectée et le chiffre indique le rang de la rupture dans le classement par ordre décroissant de l'amplitude du saut.

Dans les régions tropicales, le rapport de mélange du CH_4 dans les observations HALOE (voir Figure 75a) montre essentiellement une chute de forte amplitude en 2001. Dans les CCM (voir Figure 75b à 75f), le rapport de mélange de CH_4 montre de très faibles fluctuations comparativement aux observations et aucun modèle ne montre un saut brutal de son rapport de mélange en 2001.

Alors que l'amplitude des plus grandes ruptures représente une variation d'environ 3% du méthane dans les observations HALOE, elle correspond à seulement 1% dans les modèles (voir Figure 76a à 76c). L'amplitude des ruptures détectées dans les modèles est relativement constante à 100 et 80 hPa alors qu'à 50 hPa, la MMM et la MMM QBO_f montre une faible décroissance linéaire des amplitudes des ruptures détectées. Pour tous les niveaux de pressions, pour les observations HALOE, les amplitudes des ruptures détectées décroissent plus ou moins linéairement avec leur nombre. A 100 et 80 hPa, la distribution ainsi que la moyenne des amplitudes de rupture dans les observations sont cinq fois plus grandes que dans les modèles (voir Figure 76d et 76e). A 50 hPa, les distributions des amplitudes des ruptures s'étendent à la fois dans les observations et dans la moyenne des modèles avec une QBO forcée.

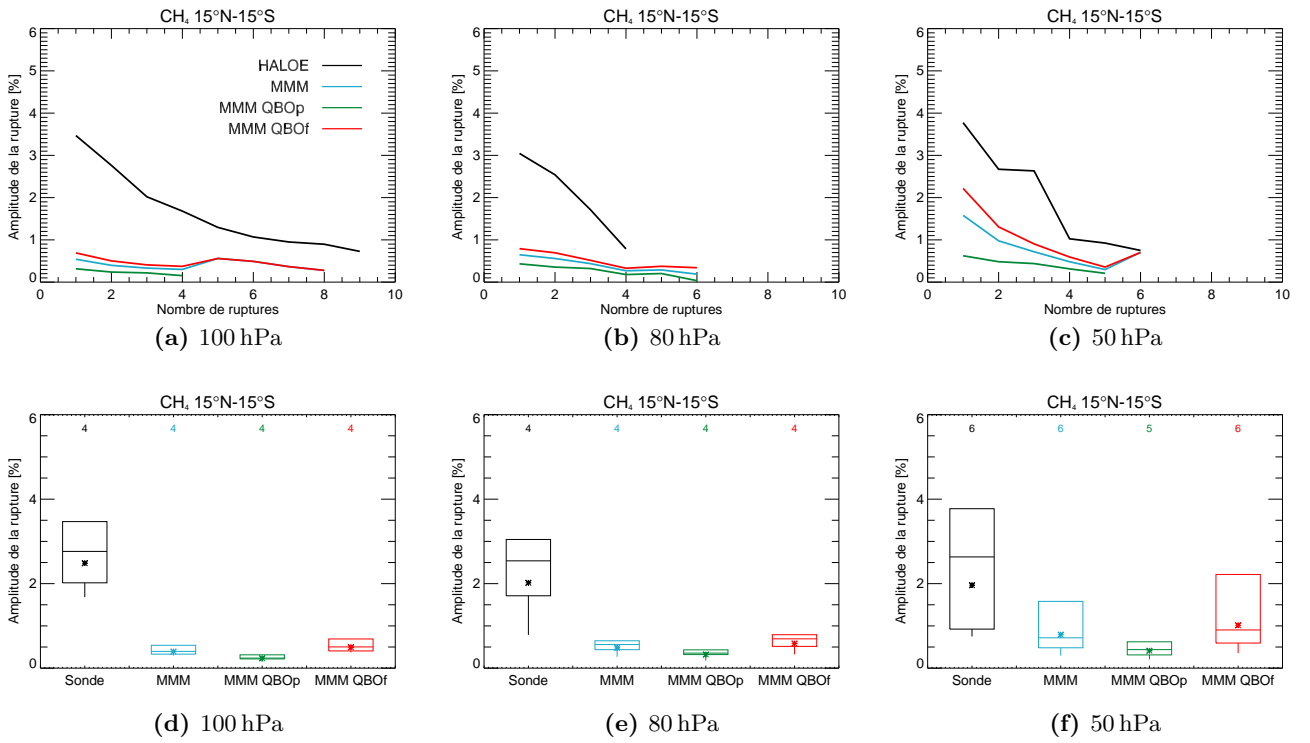


Fig. 76. — En haut, classement par ordre décroissant des amplitudes (% de la valeur moyenne de la série) des ruptures détectées pour la période 1992-2004 aux tropiques pour le méthane, (a) à 100 hPa, (b) à 80 hPa et (c) à 50 hPa. En bas, diagrammes en boîte pour les ruptures détectées de plus fortes amplitudes pour le méthane aux tropiques, (d) à 100 hPa, (e) à 80 hPa et (f) à 50 hPa. Les observations HALOE sont représentées en noir, la MMM en bleu, la MMM QBOp en vert et la MMM QBOf en rouge.

5.3.6 Variabilité forcée vs variabilité interne

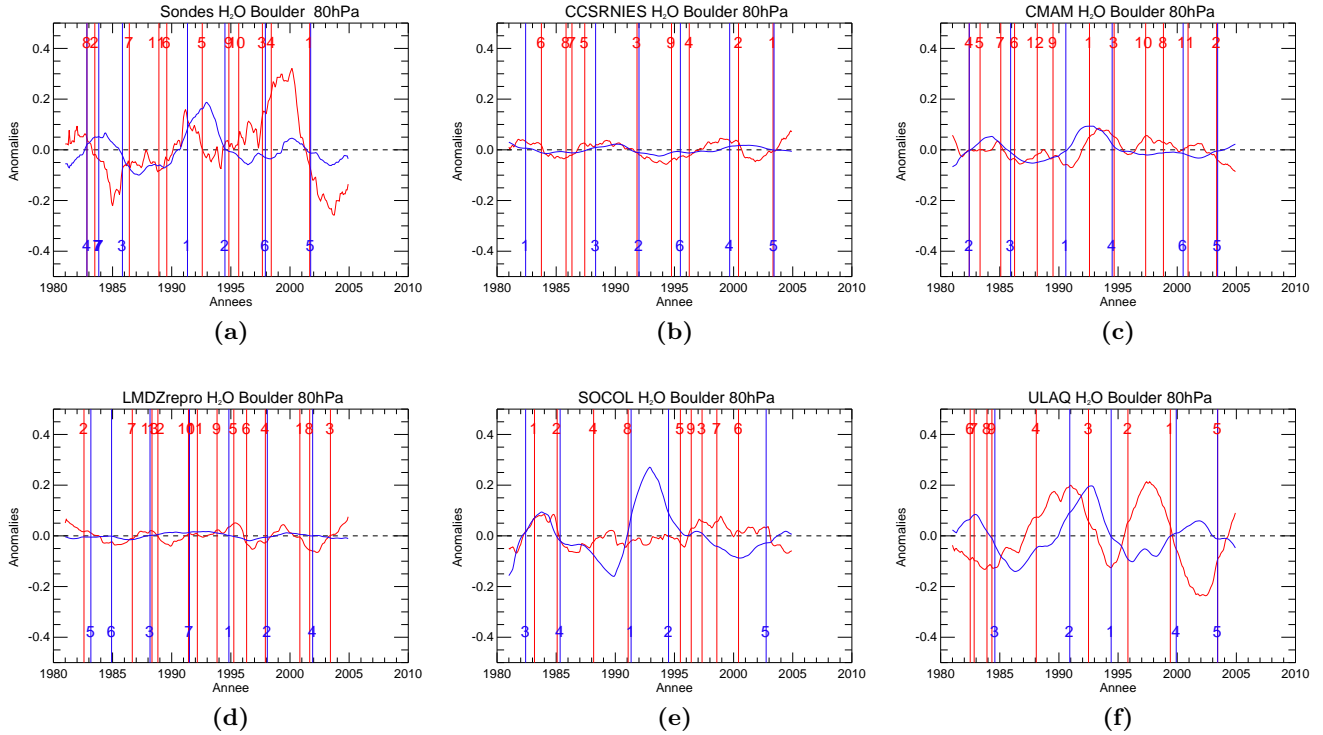


Fig. 77. — Evolution temporelle des anomalies du fit (bleu) et des résidus (rouge) entre 1981 et 2004 à 80 hPa à Boulder, (a) les observations sondes, (b) le CCM CCSRNIES, (c) le CCM CMAM, (d) le CCM LMDz-REPROBUS, (e) le CCM SOCOL et (f) le CCM ULAQ. Les traits verticaux représentent les années où une rupture est détectée et le chiffre indique le rang de la rupture dans le classement par ordre décroissant de l'amplitude du saut.

Comme il a été décrit dans la section 5.1.3, l'origine de la forte diminution de la vapeur d'eau de 2001 reste encore une question ouverte [Randel et al., 2006; Rosenlof and Reid, 2008; Dhomse et al., 2008; Fueglistaler, 2012]. A partir de notre méthodologie de détection de ruptures, nous nous sommes intéressés de savoir si globalement les ruptures détectées dans les séries temporelles (vapeur d'eau, ozone, température et méthane) sont induites par les forçages externes ou par la variabilité interne. Pour cela, nous avons appliqué, dans un premier temps, la méthode de régression linéaire multiple (MLR) sur les séries temporelles de vapeur d'eau effectuées à Boulder que nous avons préalablement désaisonnalisées. Puis, dans une seconde étape, nous avons appliqué la méthode de détection de ruptures sur les deux composantes résultantes de la MLR. Le modèle MLR est constitué de la somme des contributions des forçages externes (*fit*) et des résidus qui représentent la variabilité interne et la part non linéaire de la réponse aux forçages externes.

Les ruptures détectées pour les deux composantes de la MLR à partir des séries temporelles à Boulder (le *fit* en bleu et le résidu en rouge) sont présentées sur les Figures 77 pour les observations sondes et les différents CCM au niveau de pressions 80 hPa. La Figure 77a montre que la composante

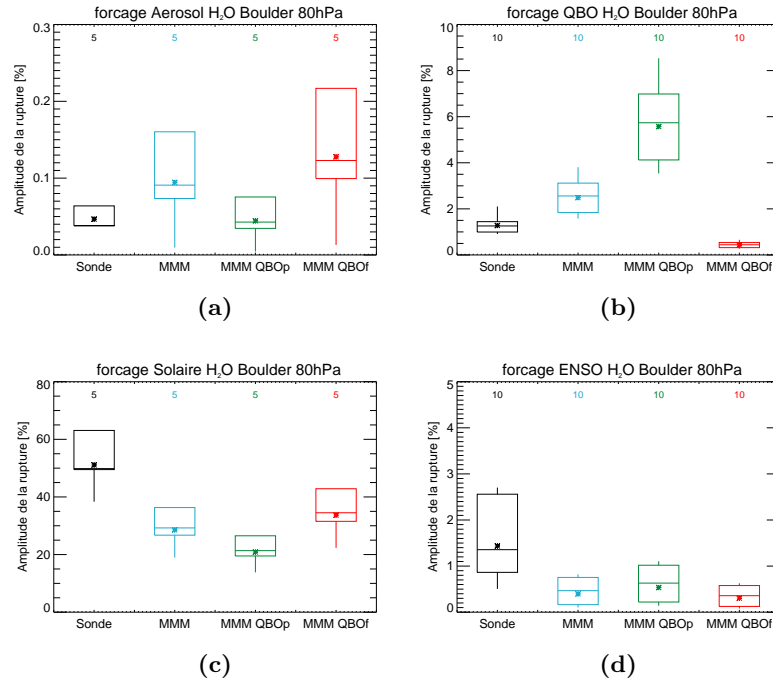


Fig. 78. — Diagrammes en boîte pour les 10 ruptures de vapeur d'eau de plus fortes amplitudes (% de la valeur moyenne de la série) à 80hPa pour les contributions des forçages externes sur les anomalies de vapeur d'eau, (a) aérosols volcaniques, (b) QBO, (c) forçage solaire et (d) ENSO. Les observations sondes sont représentées en noir, la MMM en bleu, la MMM QBOp en vert et la MMM QBOf en rouge.

expliquée par les forçages externes (courbe bleue) des observations sondes présente essentiellement les ruptures associées aux éruptions volcaniques : les deux phases de l'éruption du Mont Pinatubo (1991 en rang 1 et 1994 en rang 2) et celles de l'éruption d'El Chichon (1983 en rang 4 et 1986 en rang 3). La rupture de 2001 et la rupture en 1998 associées au fort évènement El Niño de 1997-1998 sont de faible amplitude. En revanche la composante résidus des observations sondes (courbe rouge) présente la rupture de 2001 au rang 1, puis celle de 1984 au rang 2, 1997-1998 aux rang 3 et 4 et enfin celle de 1993 au rang 5. Ces détections de 1997-1998 correspondent au fort évènement d'El Niño et celles de 1984 et 1993 aux éruptions volcaniques. Ces dernières ruptures proviennent vraisemblablement des réponses non linéaires des forçages externes de l'ENSO et des aérosols volcaniques qui sont contenues dans la composante résiduelle de la MLR. Ces résultats montrent que la rupture observée en 2001 n'est pas associée à une réponse linéaire des forçages externes et qu'elle est certainement générée par des processus internes ou par une réponse non linéaire aux forçages externes. Dans les CCM (voir Figure 77b à 77f), deux composantes (résidu en rouge et *fit* en bleu) montrent peu de modulations de grandes amplitudes à l'exception de trois modèles (ULAQ, SOCOL et CMAM). Généralement, le *fit* (composante expliquée par les forçages externes) présente les mêmes ruptures que dans les observations sondes particulièrement celles associées aux éruptions volcaniques. Les Figures 78 affinent la comparaison faite entre les observations sondes et les modèles et présentent les diagrammes en

boîte des amplitudes des ruptures détectées sur chaque composante du *fit* correspondant à un forçage externe. Les amplitudes des ruptures liées aux forçages externes ont tendance à être surestimées, par exemple pour les aérosols volcaniques et la QBO (voir Figure 78a et 78b). Pour la composante QBO (Figure 78b), cette surestimation des amplitudes des ruptures par les modèles n'est pas visible pour la MMM avec une QBO forcée. Dans le cas du forçage solaire (Figure 78c) et du forçage ENSO (Figure 78d), les modèles sous-estiment l'amplitude des plus grandes ruptures. Concernant les ruptures détectées dans la composante résiduelle de la MLR (rouge sur les Figure 77), seul le modèle ULAQ présente des modulations d'amplitudes comparables aux observations mais à des positionnements temporels différents.

Les Figures 79 présentent les diagrammes en boîte des plus fortes amplitudes de ruptures pour le *fit* (réponse linéaire aux forçages externes) (à gauche) et la composante résiduelle (à droite) des observations sondes et des moyennes de modèles (MMM, MMM QBOp, MMM QBOf) à 80 hPa. Les amplitudes de ruptures des observations sont généralement beaucoup plus importantes et présentent une plus large gamme de valeurs dans la composante résiduelle que dans la composante *fit*. En revanche, cette différence entre le *fit* et le résiduel est très faible dans les modèles. Clairement, les modèles sous-estiment l'amplitude des ruptures. Cette déficience des modèles est très prononcée sur la composante résiduelle (voir Figure 79b).

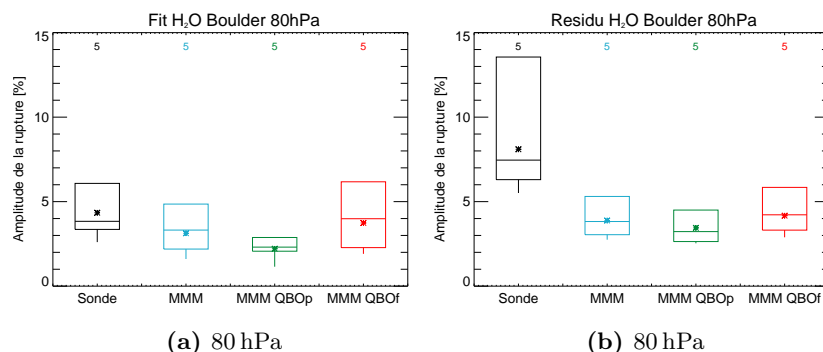


Fig. 79. – Diagrammes en boîte pour les 10 ruptures de vapeur d'eau de plus fortes amplitudes (% de la valeur moyenne de la série) pour la période 1981-2004 à 80 hPa, (a) pour le *fit* et (b) pour les résidus de la MLR à Boulder. Les observations sont représentées en noir, la MMM en bleu, la MMM QBOp en vert et la MMM QBOf en rouge.

5.4 Conclusions et perspectives

Dans ce chapitre nous nous sommes intéressés à l'analyse de la variabilité de la vapeur d'eau dans la stratosphère et à l'évaluation de la capacité des modèles de chimie climat à la reproduire. Dans une première partie nous avons analysé à l'aide de quatre diagnostics la variabilité de la vapeur d'eau dans la série de mesures sondes à Boulder puis dans une seconde partie nous sommes intéressés aux phénomènes de ruptures dans les mesures sondes et dans les observations HALOE.

L'estimation des tendances à partir de la longue série de mesures effectuées à Boulder est très sensible à la fenêtre temporelle choisie du fait de la présence de l'importante rupture en 2001. Les tendances estimées à partir des résultats des modèles ne représentent qu'un quart des tendances des observations. La comparaison entre les observations sondes effectuées à Boulder et les données HALOE moyennées entre 35° et 45° N présente un biais qui a déjà pu être souligné dans d'autres analyses [Randel *et al.*, 2004; Chiou *et al.*, 2006] et qui a très probablement une origine instrumentale [Kley *et al.*, 2000].

L'amplitude du cycle saisonnier de la vapeur d'eau est bien représentée dans les modèles. Généralement, la phase du cycle est décalée de 1 à 2 mois dans les résultats des modèles.

Les différentes périodes associées aux forçages externes sont présentes dans l'analyse spectrale des mesures sondes de la vapeur d'eau mais elles restent souvent en dessous du seuil de significativité. En revanche, les puissances spectrales issues de l'analyse des séries de vapeur d'eau des CCM sont généralement supérieures amplifiant ainsi certains pics détectés dans les observations sondes. Néanmoins, cette analyse spectrale nécessite de traiter une très longue série temporelle avec très peu de bruit, afin de présenter des résultats significatifs. Ces conditions sont difficiles à rassembler dans l'analyse spectrale de la série de mesures à Boulder qui est assez bruitée. Cependant, l'ENSO et la QBO semblent être les deux forçages externes les plus présents dans le périodogramme de la vapeur d'eau. La réduction du domaine temporel tend à lisser les pics de périodicité. Lorsque l'on compare à l'analyse spectrale des mesures sondes, les périodogrammes des observations HALOE (moyennées entre 35° et 45° N) présentent des pics de périodicité plus précis et plus significatifs. De la même façon, l'analyse spectrale des résultats de CCM issue des moyennes zonales révèle des puissances spectrales plus grandes que celles issues des champs 3-D à la localisation de Boulder car les séries zonales sont moins bruitées que les séries issues des champs 3-D. Les pics de périodicité à partir des champs zonaux de CCM ont tendance à être mieux définis et au-dessus du seuil de significativité.

La variance totale issue des observations sondes est généralement deux fois plus élevée que la variance issue des modèles. Le cycle saisonnier représente, en moyenne, une part plus importante de la variance totale dans les résultats des modèles (64%) comparativement aux observations (25%). Le terme de tendance représente le forçage dominant de la variabilité de la vapeur d'eau expliquée par les forçages externes dans les séries d'observations sondes. Les mêmes résultats dans l'analyse des séries des CCM sont retrouvés, à l'exception du niveau 80 hPa où les modèles ont tendance à sous-estimer le terme de tendance pour en contre partie surestimer le terme solaire. Globalement, les CCM présentent une réponse surestimée des forçages solaires, aérosols volcaniques et QBO. La réduction du domaine temporel a très peu d'effet sur la variance totale des séries temporelles de vapeur d'eau des observations sondes. La variance totale sur la période 1992-2004 reste ainsi représentative de la variance totale sur 24 ans (1981-2004). En raison du très faible impact de la réduction de la durée de la série temporelle sur le cycle saisonnier, les variances des séries désaisonnalisées restent très semblables dans les observations sondes et dans la moyenne des modèles. La contribution totale des forçages externes a tendance à diminuer dans les observations lorsque l'on considère la courte série temporelle. Ceci est principalement dû à la diminution du terme de tendance. En revanche, la réduction de la durée

de la série tend à augmenter la contribution de l'ENSO et de la QBO compensant ainsi la diminution du terme de tendance sur la contribution totale de la variance expliquée par les forçages externes. L'effet de la réduction de la durée de la série temporelle est également associé, dans les résultats des modèles, à la réduction du terme de tendance mais aussi à l'augmentation du terme solaire et ENSO. La variance totale des données HALOE moyennées entre 35 ° et 45 ° N représente 25% de la variance des observations sondes à Boulder. La contribution du cycle saisonnier par rapport à la variance totale est assez similaire entre les deux jeux de données. Les résultats des modèles issus des champs zonaux sous-estiment la variabilité de la vapeur d'eau et ont des difficultés à reproduire les déviations par rapport à la moyenne zonale qu'on a pu noter entre les sondes et les observations d'HALOE. A 80 et 50 hPa, les $|R^2|$ des données sondes et des données HALOE sont très différents. A 80 hPa, la tendance devient le forçage principal pour expliquer la variance des données HALOE. A 50 hPa, la tendance est toujours le terme de forçage principal pour expliquer la variance avec 30% de la variance expliquée, et la QBO devient un forçage secondaire avec 20% de la variance expliquée. Pour les champs zonaux des CCM, les valeurs de $|R^2|$ sont globalement plus élevées et s'explique par une amplification globale de tous les termes.

Dans la seconde partie, nous nous sommes également particulièrement intéressés aux phénomènes de ruptures dans le but de mieux comprendre la brusque chute de vapeur d'eau observée en 2001 dans les séries temporelles. Nous avons mis en place une méthodologie de détection de ruptures basée sur l'évaluation d'un saut significatif entre deux fenêtres temporelles successives. Cette détection de ruptures permet de classer les sauts de plus grandes amplitudes d'une série temporelle. L'analyse des détections de ruptures sur les forçages externes permet de visualiser distinctement les sauts associés aux cycles de variations. Ces résultats ont montré que le saut de 2001 était visible et classé au rang 1 uniquement dans le forçage de l'ENSO suggérant que ce dernier pourrait avoir contribué à la chute de vapeur d'eau observée en 2001.

L'analyse des détections de ruptures sur la longue série de mesures de vapeur d'eau effectuée à Boulder classe la chute de 2001 au rang 1. Les rangs supérieurs sont également associés aux forçages externes (ENSO et aérosols volcaniques). La rupture de 2001 n'apparaît généralement pas dans le 5 plus grandes ruptures détectées dans les séries des modèles (à l'exception d'un modèle). Les détections et les ordres des classements des ruptures entre les différents CCM montrent une grande disparité. Globalement, les amplitudes des ruptures des séries d'observations sondes sont deux fois plus grandes que celles issues des séries de modèles. La distribution des amplitudes des ruptures détectées dans les observations sondes est homogène et régulière à l'exception des très grandes ruptures qui se démarquent particulièrement à 100 et 80 hPa. L'amplitude des ruptures décroît légèrement quand l'altitude augmente.

L'effet de la réduction de la longueur de la série temporelle sur les distributions des amplitudes des ruptures est assez faible. Aux moyennes latitudes de l'hémisphère nord, les amplitudes de ruptures détectées à partir des données HALOE sont clairement moins grandes et moins nombreuses et se rapprochent plus des résultats des modèles. La forte rupture de 2001 reste également visible et classée parmi les ruptures de plus grandes amplitudes dans les observations HALOE de vapeur d'eau, d'ozone,

de méthane et de température.

A partir de notre méthodologie de détection de ruptures, nous nous sommes intéressés de savoir si globalement les ruptures détectées dans les séries temporelles étaient induites par les forçages externes ou par la variabilité interne. Pour cela, nous avons appliqué la méthode de détection de ruptures sur les deux composantes résultantes de l'analyse de la MLR : la réponse linéaire aux forçages externes (*fit*) et le résidu qui représente la variabilité interne et la part non linéaire de la réponse aux forçages externes. Ces résultats montrent que la rupture observée en 2001 n'est pas associée à la réponse linéaire des forçages externes et qu'elle est très certainement générée par des processus internes ou par une réponse non linéaire des forçages externes. Les amplitudes des ruptures des observations sondes sont généralement plus importantes et présentent une plus large gamme de valeurs dans la composante résiduelle que dans la composante *fit*. Les amplitudes des ruptures de la réponse linéaire et des résidus des modèles sont assez similaires. Ces résultats montrent que les modèles sous-estiment l'amplitude des ruptures et notamment dans l'analyse de la composante résiduelle. Ce résultat est cohérent avec le fait que les modèles sous-estiment fortement la variabilité interne ou la variabilité forcée de nature non linéaire.

En perspective, l'apport d'autre jeux d'observations tel que les sondes SHADOZ aux tropiques ou les sondes du réseau NDACC renforcerait l'analyse de ce chapitre sur la variabilité de la vapeur d'eau mais également de l'ozone et de la température. L'analyse de champ dynamique tel que la vitesse verticale permettrait de mieux cibler l'origine de la rupture de 2001 et les faiblesses des modèles.

Chapitre 6

Impact climatique de la reconstitution de l'ozone stratosphérique

Sommaire

6.1	Introduction	179
6.2	Models runs	179
6.3	Results	180
	6.3.1 ozone changes	180
	6.3.2 radiatif forcing	184
6.4	conclusions	187

Résumé

Ce dernier chapitre est l’objet d’un article qui est accepté dans le journal *Geophysical Research Letters*, dont le résumé est ci-dessous.

L’ozone stratosphérique est un paramètre clé du système climatique et l’appauvrissement récent de l’ozone joue un rôle important dans le refroidissement de la surface de la Terre. Le forçage radiatif (RF) de l’appauvrissement de l’ozone stratosphérique est estimé de l’ordre de $-0,05 \text{ W.m}^{-2}$ [IPCC *et al.*, 2007]. Suite au protocole de Montréal et à ses amendements, la majeure partie des constituants appauvrisseurs d’ozone (ODS) d’origine anthropique contenant du chlore et du brome ont été éliminés, la charge en chlore et brome stratosphériques a commencé à diminuer à la fin du 20^{ème} siècle. Par conséquent, l’ozone stratosphérique devrait retrouver voire dépasser son niveau de 1960 à la fin de ce siècle [Eyring *et al.*, 2010; WMO, 2011]. En conséquence, on pourrait s’attendre à ce que le forçage radiatif négatif actuel de l’ozone stratosphérique se dégrade et disparaisse en conformité avec la reconstitution de l’ozone stratosphérique. Les résultats de ce chapitre montrent que la plupart des projections de l’ozone basées sur le scénario standard A1B sont en accord sur l’évolution future de l’ozone. Cependant, ces projections futures de l’ozone sont très incertaines dans la basse stratosphère, en particulier aux moyennes latitudes de l’hémisphère nord. Ainsi, l’évolution du RF de l’ozone stratosphérique ne peut pas être prédit avec confiance. Le RF de l’ozone stratosphérique pourrait rester négatif tout au long du siècle ou changer de signe et atteindre $\sim 0,25 \text{ W.m}^{-2}$ en 2100. Cette dispersion du RF de l’ozone stratosphérique future devrait être encore plus important si les projections futures de l’ozone tiennent compte des incertitudes des émissions futures des gaz à effet de serre (GHG) [Eyring *et al.*, 2010]. De toute évidence, contrairement à la plupart des différents constituants du forçage radiatif climatique, les changements de l’évolution de l’ozone stratosphérique ne devrait pas être considéré comme un indicateur de son RF global.

Dans les chapitres précédents (section 4 et 5), nous avons évalué la capacité des modèles à reproduire la variabilité passée de la composition chimique stratosphérique. Dans ces chapitres, nous avons révélé les faiblesses et les points forts des modèles de chimie-climat. Dans ce dernier chapitre à partir des scénarios futurs décrits dans la section 2.1.2.1, nous nous sommes focalisés sur les projections de l’évolution future de l’ozone (section 6.3.1) et particulièrement sur l’évolution future de son forçage radiatif (section 6.3.2).

6.1 Introduction

Over the last 50 years, the atmospheric levels of chlorine and bromine species have been greatly enhanced by the anthropogenic release of compounds such as chlorofluorocarbons (CFCs) and halons. As a result, stratospheric ozone has decreased globally over the past few decades due to halogen-catalysed chemical destruction. Following the Montreal Protocol and its amendments, the majority of CFC and halon emissions have been phased out and the atmospheric loading of these compounds is now decreasing from a peak at the end of the 20th century. Therefore, stratospheric ozone is projected to recover from the effects of anthropogenic chlorine and bromine-catalysed destruction by the middle or end of the 21st Century [Eyring *et al.*, 2010].

Ozone is a radiatively important gas as it absorbs both short wavelength solar ultra-violet (UV) as well as thermal infra-red (IR) radiation. Past stratospheric ozone depletion is estimated to have acted to cool the surface, *i.e.* it has a negative radiative forcing (RF). The latest estimates for RF of the stratospheric ozone depletion range between -0.03 and -0.11 W.m⁻² with a mean value of about -0.05 W.m⁻² [IPCC *et al.*, 2007; WMO, 2011; Cionni *et al.*, 2011; Hassler *et al.*, 2012], which has offset some of the warming from increased greenhouse gas (GHG) levels over the last few decades. Therefore, the future recovery of stratospheric ozone might naturally be expected to generate a RF of the opposite sign (*i.e.* positive) to the actual negative forcing. In this paper we use predictions of the recovery of the ozone layer from a collection of state-of-the-art chemistry-climate models (CCMs) to investigate the radiative impact of stratospheric ozone recovery.

6.2 Models runs

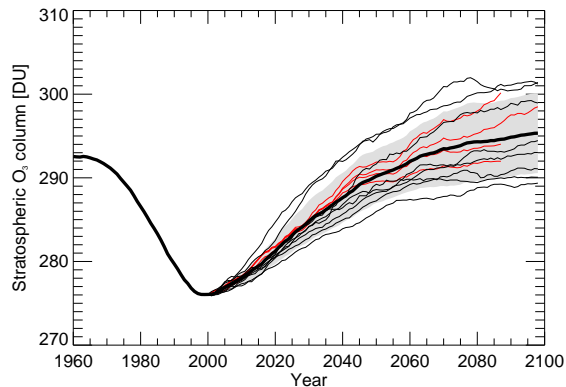
We investigate the RF of a future stratospheric ozone recovery using ozone projections that were made by a range of CCMs (CCSRNIES, CMAM, GEOSCCM, LMDz-REPROBUS, MRI, SOCOL, ULAQ, UMSLIMCAT, WACCM) within the framework of the SPARC (Stratospheric Processes and their Role in Climate) CCMVal-2 (Chemistry-Climate Model Validation phase 2) programme [CCMVal, 2010]. Regarding the past, these 9 CCMs are generally able to reproduce most of the structures of the ozone trends observed in the last decades. For ozone projections, the evolution of GHGs in CCMs is forced according to the SRES A1B scenario which is close to the medium RCP 6.0 scenario [Morgenstern *et al.*, 2010] whereas the evolution of ozone depleting substances (ODS) is forced according to the scenario A1

which is slightly modified to account for an earlier phase-out of hydrochlorofluorocarbons (HCFCs). Since ODS emissions are successfully controlled by the Montreal Protocol, the future evolution of ODS levels is much more certain than the evolution of GHG levels. The spread in CCM ozone projections originates from differences in present-day ozone calculations and in future model ozone trends [CCMVal, 2010; WMO, 2011]. Since the present-day ozone climatology is well known, the only actual uncertainty for future ozone is the ozone trend during the 21st century. In order to consider only the uncertainty in the ozone trend in the analysis, and not model biases in present-day ozone climatologies, 2100 ozone projections from individual models were reconstructed from a 2000 reference ozone climatology, taken as the 2000 multi-model mean (MMM) climatology, and from the global distribution of 2000-2100 ozone trend from individual models. Before reconstruction, individual model projections are zonally averaged and smoothed with an 11-year running mean. As expected, the range of reconstructed ozone projections considered here is smaller than the actual range of CCMVal ozone projections [CCMVal, 2010]. The multi-model mean ozone projection (called $MMMO_3$ thereafter) represents simply the mean of individual model ozone projections and also corresponds to the ozone projection reconstructed from the zonal mean distribution of the MMM local ozone trend. The effect of ozone projection uncertainties on RF is evaluated by considering the ensemble of RFs calculated for individual model ozone projections. To identify the regions driving RF, we also consider the case of the MMM ozone projection ($MMMO_3$) with lower stratospheric (LS) ozone remaining unchanged below 20 hPa during the 21st century (called $MMMO_3$ -US) and another case where middle and upper stratospheric (US) ozone remain unchanged above 20 hPa (called $MMMO_3$ -LS).

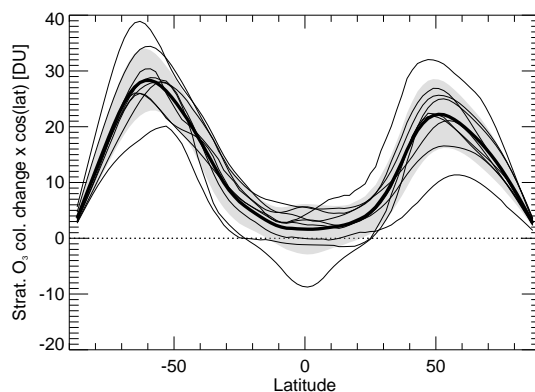
6.3 Results

6.3.1 ozone changes

Figure 80a shows the predicted evolution of global mean column O_3 from 1960 through to 2100 under the standard A1B scenario for the $MMMO_3$ projection and for the range of individual model ozone projections. For the standard GHG A1B scenario, all the models predict a recovery of global stratospheric ozone during the 21st century. However, there are still significant differences in the timing and extent of ozone recovery between models. Global mean stratospheric ozone changes between 2000 and 2100 range from 4.8 to 9.2% with a MMM of $6.98 \pm 1.73\%$, giving an inter-model range 4.4% (~ 12 DU) (see Figure 80a and Table 13). Figure 80a also shows an example of projected evolutions from a CCM (LMDz-REPROBUS) under a variety of RCP GHG scenarios [Szopa *et al.*, 2012] illustrating the effect of uncertainties in future GHGs emissions on ozone projections. The rate and extent of ozone recovery, as stratospheric chlorine and bromine loadings decrease towards their natural levels, is modified by the degree of GHG-induced climate change. Larger GHG loadings (higher RCPs) cause larger recovery due to stronger stratospheric cooling [Eyring *et al.*, 2010]. For LMDz-REPROBUS projections, global mean stratospheric ozone changes between 2000 and the end of the century vary from about 5.8 to 8.6%, giving a single model range from GHG scenario uncertainties of 2.8% (~ 8



(a)



(b)

Figure 80. – (a) Temporal evolution of the stratospheric globally averaged column ozone (DU) from 1960 to 2100 from individual CCMVal-2 model simulations forced according to the standard A1B scenario (thin black lines), from the MMM ozone projection (thick black line), and from LMDz-REPROBUS model simulations forced according to a range of RCP scenarios (thin red lines); the red lines correspond to (from top to bottom) RCP2.6, RCP4.5, A1B (close to RCP6.0), and RCP8.5 scenarios, respectively (taken from Szopa et al. [2012]). The grey shading indicates the 1σ spread around the MMM globally averaged stratospheric column ozone. (b) Stratospheric column ozone change (DU) between 2100 and 2000 as a function of latitude from individual CCMVal-2 model simulations (thin black lines) and from the MMM stratospheric column ozone projection (thick black line). The grey shading indicates the 1σ spread around the MMM latitude-dependent stratospheric column ozone change. Stratospheric column ozone changes in plot (b) are weighted by $\cos(\text{latitude})$, which allows a comparison of the contributions of different latitude bands to the change in global mean stratospheric ozone. Before treatment (see text), individual model ozone projections were zonally averaged and smoothed with an 11-year running mean. Atmospheric measurements and model simulations constrained by emission inventories indicate that the increase in anthropogenic ODS (mostly CFCs) emissions was very marginal before 1960 [WMO, 2011]. Therefore, trends in stratospheric ozone are expected to be negligible before the 1960s compared to post-1960s changes. The RCP scenarios give different extents of GHG-induced stratospheric cooling and therefore different rates of ozone recovery.

Projection	Global stratospheric ozone change (%)	Global mean Radiative Forcing (W.m^{-2})
MMMO ₃	+6.98	+0.131
MMM (σ)	+6.98 (± 1.73)	+0.114 (± 0.079)
Model range	from +4.82 to +9.18	form -0.001 to +0.268
MMMO ₃ -US (LS fixed)	+4.64	-0.057
MMMO ₃ -LS (US fixed)	+2.34	+0.188

Table 13. – Global mean stratospheric ozone change (%) and radiative forcing at the tropopause (W.m^{-2}) for different scenarios of ozone change in 2100 relative to 2000. The calculation of the stratospheric ozone column is based on a tropopause defined as the 100 ppbv O₃ contour [Prather et al., 2011]. The MMO₃ projection corresponds to the multi model mean (MMM) ozone projection (i.e. mean of individual model ozone projections) and its RF is calculated from this mean ozone projection. The MMM projection listed in this table corresponds to the same mean ozone projection but its RF is calculated as the MMM RF (i.e. mean of individual model RFs that are calculated from individual model ozone projections). The standard deviations on the MMM ozone projection and MMM RF are indicated. The ranges of global ozone change and RF for individual model projections are also given. The MMO₃-US projection corresponds to the MMO₃ ozone projection but with LS ozone remaining unchanged below 20 hPa during the 21st century. The MMO₃-LS projection corresponds to MMO₃ but with middle and US ozone remaining unchanged above 20 hPa.

DU) which is approximately a factor 2 higher than the spread (~ 4 DU) calculated by the CAM3.5 CCM for the same RCP scenarios [Eyring et al., 2010]. These single model ranges from CCMs (LMDz-REPROBUS, CAM3.5) run under different possible GHG scenarios are smaller than the inter-model range (~ 12 DU) found for an ensemble CCMs run under the same single GHG scenario, suggesting that, in contrast to most important climate forcing agents, the dominant source of uncertainties in ozone projections is actually not future emissions but model uncertainties.

More importantly with respect to RF, the recovery of stratospheric ozone is not at all spatially uniform. Figure 80b shows the column O₃ change between 2000 and 2100 as a function of latitude for individual model projections and the MMO₃ projection. Column O₃ changes are weighted by $\cos(\text{latitude})$ in order to identify directly changes that are the most relevant for global O₃. Column O₃ increases at all the latitudes except in the tropics for 3 models. The most significant changes for global O₃ peak around 50-60° in both hemispheres. It is also where the model spread is the largest. The changes in tropical column ozone are much more modest in all the models. Figure 81a shows the annual zonal mean distribution of ozone changes between 2000 and 2100 in the MMO₃ projection. Throughout most of the stratosphere, ozone increases over this period by up to 40%. The strongest ozone increases occur in the US and in the extra-tropical lowermost stratosphere (LMS) and tropopause region. Ozone decreases in the tropical LS reach up to 10%. This is due to a stronger upwelling related to the strengthening of the Brewer-Dobson circulation in the 2100 atmosphere [WMO, 2011]. Although the models agree on the qualitative aspects of ozone recovery (i.e. general increase throughout most of the stratosphere except in the tropical LS), there are substantial quantitative differences between models in terms of magnitude and spatial extent of those features. Figure 81b shows the global distribution of the standard deviation (σ) of the MMM ozone trend. The most pronounced differences between models are found in the LMS and tropopause region with σ exceeding 10% at almost all latitudes. In contrast, there is a reasonably good agreement among models throughout most of the

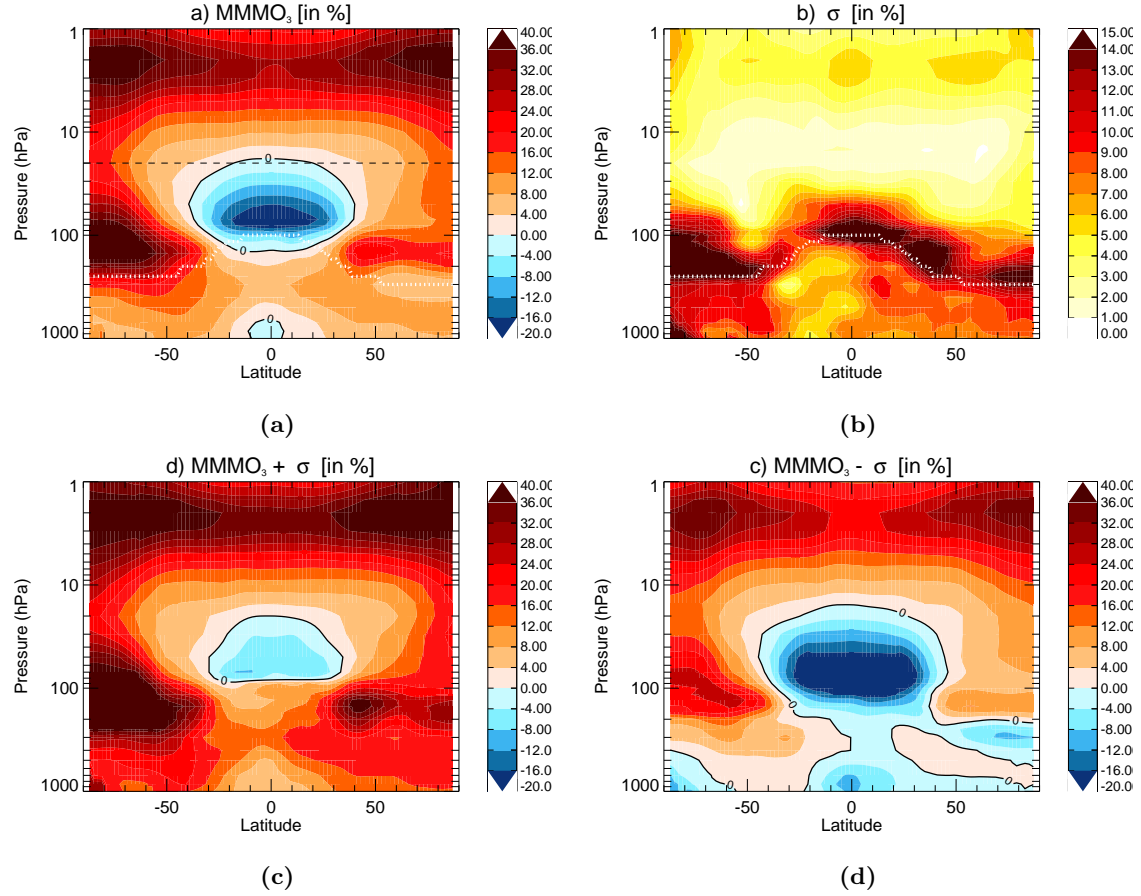


Figure 81. — Difference in O₃ mixing ratio (%) between 2100 (A1B scenario) and 2000 from the CCMVal runs for (a) multi-model mean projection (MMMO₃), (b) standard deviation on the MMO₃, (c) MMO₃- σ projection, (d) MMO₃+ σ projection (see text for details). The black dashed horizontal line in plot (a) indicates the 20 hPa level which represents the upper limit above which ozone remains unchanged in MMO₃-LS and the lower limit below which ozone remains unchanged in MMO₃-US. The white dotted line in plots (a) and (b) indicates the tropopause defined as the 100 ppbv O₃ contour [Prather et al., 2011].

stratosphere (*i.e.* the upper part of the LS, the middle and upper stratosphere) with σ ranging from 1 to 5%.

In order to picture how exactly the uncertainties in ozone trend translates into a spread in ozone change distribution, we plot in Figures 81c and 81d ozone changes for two ozone projections that are reconstructed from the MMM local ozone trends reduced or increased by 1σ (*i.e.* 1 standard deviation of the MMM local trend). The difference between the two projections, called hereafter $\text{MMMO}_3-\sigma$ and $\text{MMMO}_3+\sigma$, can be viewed as indicative of the model range in ozone changes in the extratropics but not in the tropics because ozone changes in US and in LS are partly anticorrelated there. Indeed, as ozone recovers in the tropical US, less ultraviolet (UV) radiation reaches the LS, resulting in a slower chemical ozone production and hence reduced levels of ozone in LS. Therefore the stronger the US ozone recovery in a model, the weaker the tropical LS ozone depletion. This well-known compensating mechanism, the so-called the “self-healing” effect [Rosenfield and Schoeberl, 2005; Portmann and Solomon, 2007], is not significant in the extratropics where UV radiation levels are lower all year and where the ozone budget is not dominated by upward transport and chemical production as in the tropics but by large-scale downward transport and chemical destruction. The largest difference between $\text{MMMO}_3-\sigma$ and $\text{MMMO}_3+\sigma$ projections is the sharp ozone enhancements in the extra-tropical LMS that are strongly attenuated in $\text{MMMO}_3-\sigma$ compared to $\text{MMMO}_3+\sigma$; for instance, the layer of ozone enhancement located between 100 and 200 hPa and extending poleward from 20°N is barely visible in the $\text{MMMO}_3-\sigma$ projection and the extent of the LMS ozone increase at southern mid and high latitudes is also much smaller. In addition, the tropical LS ozone decline is vastly reduced below 50 hPa in $\text{MMMO}_3-\sigma$ compared to $\text{MMMO}_3+\sigma$.

6.3.2 radiatif forcing

To estimate the RF caused by the change in ozone from 2000 to 2100 we use the off-line version of the Edwards and Slingo (1996) radiation model. A climatology based on International Satellite Cloud Climatology Project (ISCCP) clouds and ECMWF reanalysis data for water vapour, temperature and trace gas data was employed (for details, see Rap *et al.* [2010]). Figure 82 shows the latitudinal variation of the MMM annual mean radiative forcing at the tropopause (expressed as $\text{RF} \times \cos(\text{lat})$) derived from the ensemble of RFs calculated for individual model ozone projections; the standard deviation corresponds to the limits of the grey shading. The latitudinal variation of RF for the MMMO_3 , $\text{MMMO}_3\text{-LS}$ and $\text{MMMO}_3\text{+US}$ projections are also plotted in Figure 82. Table 13 provides the globally averaged values of RF for the different ozone projections. The MMM globally averaged RF (*i.e.* mean of the global RFs of individual model ozone projections) is $+0.11 \pm 0.08 \text{ W.m}^{-2}$. This value can be combined with the global RF of past stratospheric ozone depletion (about -0.05 W.m^{-2}) to derive a best estimate of about $+0.06 \text{ W.m}^{-2}$ for the 2100 RF with respect to the pre-ozone depletion period (before the 1970s).

As the latitudinal variation of RF and its global mean ($+0.13 \text{ W.m}^{-2}$) for the MMMO_3 projection are very close to the latitudinal variation and global mean of the MMM RF (see Figure 82), we

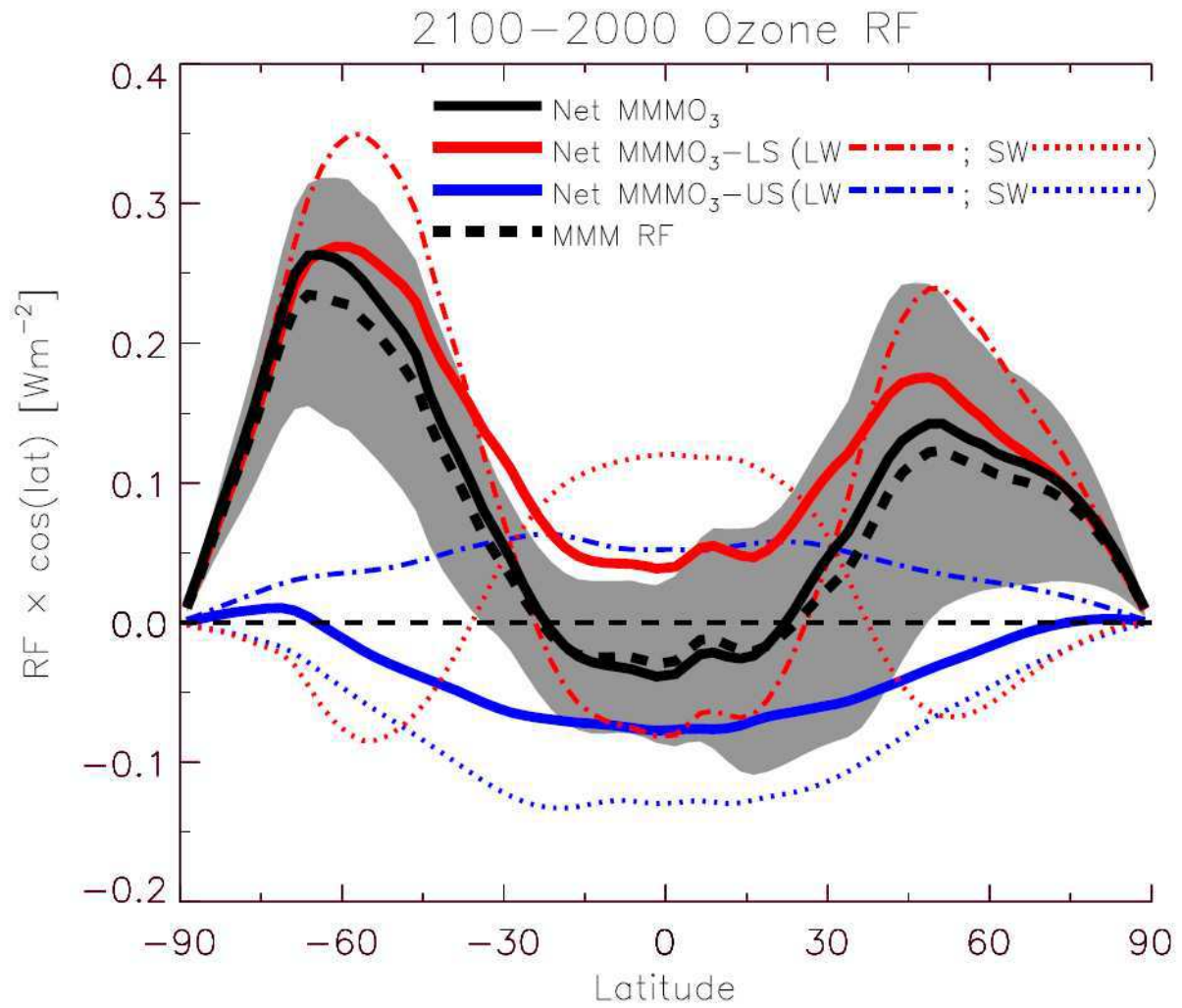


Figure 82. – RF as a function of latitude. The RF values are weighted by $\cos(\text{latitude})$, which allows a comparison of the contributions of different latitude bands to the overall RF. The solid lines show RF from 3 projections: MMMO_3 (black), $\text{MMMO}_3\text{-LS}$ (US fixed) (red), and $\text{MMMO}_3\text{-US}$ (LS fixed) (blue). The thick dashed line and the grey shading indicate the MMM RF and its $\pm 1\sigma$ variations respectively. Also shown are the LW and SW contributions to the total RF in the $\text{MMMO}_3\text{-LS}$ and $\text{MMMO}_3\text{-US}$ projections.

simply diagnose the different components of the radiative perturbations in the MMMO₃ projection. The overall 2100 RF with respect to 2000 is dominated by the strongly positive RF at mid and high latitudes in both hemispheres (thick black line in Figure 82). According to the sensitivity simulations (red and blue lines in Figure 82), this positive RF in the extra-tropics is mostly due to the extensive ozone increases in the lower stratosphere below 20 hPa which leads to a strong longwave (LW) warming. RF is slightly negative in the tropics where the negative shortwave (SW) RF caused by the US ozone increase, combined with the negative LW RF caused by the LS ozone decrease, outweighs the positive LW RF caused by the US ozone increase and the positive SW RF caused by the LS ozone decrease.

While models agree relatively well on ozone changes in middle and upper stratosphere, the dispersion in ozone projections is considerable in the LMS region resulting in large inter-model differences in the latitudinal variation of RF and in global RF. Individual model global mean RF ranges from -0.001 to +0.268 W.m⁻² with a MMM global RF of $+0.117 \pm 0.079$ W.m⁻². There is no clear correlation between global ozone changes and global RF. For instance, the individual model projection corresponding to the lowest global ozone change (4.82%) generates a RF (+0.14 W.m⁻²) greater than the MMM RF (+0.11 W.m⁻²) whereas the individual model projection generating the lowest global RF (-0.001 W.m⁻²) corresponds to a global ozone change (6.15%) quite close to the MMM global ozone change (~7%). This illustrates how decoupled global ozone change and RF can be in model projections. Clearly, unlike most climate forcing agents [IPCC *et al.*, 2007], the changes in global stratospheric ozone burden should not be considered as a reliable indicator of its overall RF in the future.

When considering a +1 σ deviation in the MMM latitude-dependent RF (top limit of the grey shading in Figure 82), RF is found to be positive at all latitudes whereas it becomes negative from 40° S to 50° N for a -1 σ deviation (bottom limit of the grey shading in Figure 82). The spread in RF is most significant at northern mid-latitudes with a peak around 40-50° N (maximum in the width of the grey shading in Figure 82) and is caused by ozone enhancements between 100 and 200 hPa from about 20° N to 60° N that vary a good deal from one model to another. Ozone enhancements in this region are strong and prominent in some individual model projections (see the MMMO₃+ σ ozone projection in Figure 81d) whereas they are relatively weak in other individual model runs (see the MMMO₃- σ ozone projection in Figure 81c). Though smaller, the spread in RF is also substantial at southern mid and high latitudes. In the tropics, although the extent of the LS ozone decrease is severely reduced below 50 hPa in MMMO₃- σ compared to MMMO₃+ σ , the spread in RF is relatively modest. This is due to the fact that tropical RF is most sensitive to ozone changes in the altitude range between 10 and 40 hPa [Riese *et al.*, 2012] where the model spread is small (see Figure 81b). Note that, since RF calculations are performed with only one radiative transfer model, the range of stratospheric ozone RF presented here does not account for another source of model uncertainties, the radiative transfer modeling [IPCC *et al.*, 2007]. However, it is unclear that different radiative transfer models applied on the same range of ozone projections would calculate very different spreads in RF, mostly because the differences between radiative models might be expected to be biases rather than random errors.

6.4 conclusions

Although stratospheric ozone and its radiative forcing are thought to have evolved together in the last century, we show here that it is uncertain that the actual negative RF will now decay and disappear in line with the recovery of stratospheric ozone. According to our model-based analysis, the RF over the 2000-2100 horizon could either end up being negligible or exceed $+0.25 \text{ W.m}^{-2}$ making it comparable to the present-day tropospheric ozone forcing ($\sim +0.35 \text{ W.m}^{-2}$, [IPCC *et al.*, 2007]). In other words, stratospheric ozone might continue offsetting some of the positive GHG forcing during this century or become a significant contributor to global warming. The range of future stratospheric ozone RF would be even wider if the spectrum of model ozone projections accounted for uncertainties in future GHG emissions (see Figure 80a; [Eyring *et al.*, 2010; Szopa *et al.*, 2012]). It is worth pointing out that the possible change of sign in stratospheric ozone RF, or the potential decoupling between the evolutions of its global burden and its overall RF are very unusual, if not unique, features among climate agents [IPCC *et al.*, 2007].

The large uncertainty in future RF of stratospheric ozone for a single GHG scenario originates from the wide range of ozone projections in the LMS and tropopause region, particularly at the northern mid latitudes. The ozone budget in this region is complex and several relevant processes such as in-situ destruction, exchanges with the tropical and polar regions, and stratosphere/troposphere exchanges may not be well simulated in global CCMs, partly because of their very coarse resolutions. Stratospheric ozone models have been designed to simulate the evolution of column ozone in a changing environment and climate [CCMVal, 2010], mostly because column ozone is the key stratospheric parameter regulating that amount of ultraviolet radiation reaching the Earth’s surface, the primary concern of the Montreal Protocol. As LMS ozone does not represent an important component of the total column and of global ozone, it has not been the priority in chemistry-transport and chemistry-climate modelling. If the magnitude, or at least the sign, of future stratospheric ozone climate forcing is to be reliably predicted, the representation of ozone processes in the lowermost stratosphere and tropopause region would need to be greatly improved in chemistry-climate models.

Conclusions et perspectives

Pour pouvoir diagnostiquer et prédire l'évolution de la composition chimique de la stratosphère, une dizaine de modèles globaux de chimie-climat (*Chemistry-Climate Models*, CCM) ont été développés. Pour évaluer leurs performances, les simulations issues de ces modèles sont comparées à différents jeux d'observations collectées au cours des 3 dernières décennies. Comme la stratosphère varie sur un large spectre d'échelles spatiales et temporelles, allant de la journée à des décennies, la validation des modèles doit aussi couvrir toutes ces échelles. Dans le cadre du programme international CCMVal/SPARC de validation des CCM, plusieurs études centrées sur des évaluations climatologiques des modèles, à base de données satellites fortement moyennées temporellement et zonalement, ont déjà été réalisées. Cette thèse se focalise sur la variabilité inter-annuelle, notamment celle de l'ozone et de la vapeur d'eau. En considérant la variabilité au dessus de sites spécifiques d'observation, la thèse apporte une dimension plus locale dans l'évaluation des CCM.

La variabilité peut être décomposée en deux parties : une variabilité dite interne (non forcée) générée au sein même du système atmosphérique et la variabilité dite forcée qui est générée par des forçages externes au système atmosphérique. Une grande partie de cette variabilité forcée a souvent pour origine des forçages externes bien identifiés tels que l'oscillation quasi-biennale (QBO, bien que de nature plus ou moins interne, est considérée comme un forçage externe), l'oscillation australe-l'El Niño (ENSO), les aérosols volcaniques, l'activité solaire et les émissions anthropiques. L'un des objectifs principaux de la thèse est d'évaluer la capacité des modèles à reproduire non seulement la variabilité inter-annuelle de la composition chimique de la stratosphère mais aussi les deux composantes de cette variabilité, la variabilité interne et la variabilité forcée. Pour ce faire, nous avons aussi caractérisé la variabilité inter-annuelle dans des jeux d'observations telles que celles du réseau NDACC, la longue série de mesures de vapeur d'eau sous ballon-sonde effectuées à Boulder, et les données satellitales HALOE. Nous avons mis en place des méthodes d'analyse de cette variabilité et les avons appliqué aussi bien aux longues séries temporelles des modèles qu'à celles des observations en échantillonnant les modèles de la même manière que les observations. Le cycle saisonnier qui est généralement la composante principale de la variabilité de la composition chimique stratosphérique est tout d'abord éliminé. Puis, des régressions linéaires multiples sur les séries désaisonnalisées ont permis de décomposer la variabilité inter-annuelle en variabilité forcée de nature linéaire (*i.e.* assume que la réponse à un forçage externe est indépen-

dante des autres forçages, linéaire et sans décalage temporel) et en variabilité dite interne, mais qui de fait comprend également la variabilité forcée de nature non linéaire. Grâce à cette approche, nous avons également pu estimer la contribution de chaque forçage externe à la variabilité de la composition chimique stratosphérique. L'analyse spectrale a révélé les périodicités propres à chacune des espèces et de les relier à celles des différents forçages externes. Cependant, cette approche nécessite des conditions d'application parfois difficiles à réunir dans certaines séries temporelles pour produire des résultats significatifs. Finalement, nous avons aussi dû développer une méthode spécifique pour caractériser un autre aspect de la variabilité, les phénomènes de ruptures. La méthode de détection des ruptures dans une série moyennée s'est révélée robuste et a permis de décrire en nombre et en amplitude des sauts assez abrupts observés dans les séries temporelles et d'étudier leurs origines.

Nous avons débuté notre analyse en évaluant la capacité des modèles à simuler la variabilité inter-annuelle des colonnes en ozone, en traceurs (*i.e.* espèces à longue durée de vie) (CH_4 et N_2O), en espèces azotées (NO_2 et HNO_3), et enfin en espèces chlorées (ClONO_2 et HCl) vue des stations d'observations du NDACC. Cette étude a clairement démontré que les longues séries temporelles de stations de mesures peuvent être très utiles dans l'évaluation des CCM. Bien que les CCM reproduisent raisonnablement bien les cycles saisonniers, en général, ils sous-estiment assez fortement la variabilité inter-annuelle de la composition chimique de la stratosphère. Les CCM sont capables de reproduire le gros de la variabilité forcée (liée à des forçages externes bien identifiés), notamment des réponses spécifiques aux forçages individuels. C'est un résultat encourageant par rapport à la confiance que l'on peut avoir dans les projections des CCM en réponse à des variations de forçages externes. Pour l'ozone, la variabilité inter-annuelle est dominée par la QBO et les fluctuations solaires aux tropiques alors que le terme de tendance lié à l'évolution de la charge en composés halogénés est plutôt dominant dans les régions polaires. Néanmoins, l'analyse des séries temporelles d'observations montre que la variabilité interne représente une grande partie de la variabilité inter-annuelle et que les CCM la sous-estiment très largement. De ce fait, les forçages externes sont responsables d'une plus grande part de la variabilité dans les modèles comparée à celle des observations. Ce manque de variabilité interne dans la composition chimique calculée par les CCM se retrouve dans la plupart des espèces et, en particulier, dans les traceurs (CH_4 et N_2O) dont la variabilité a essentiellement pour origine la variabilité du transport. Cela indique que ce manque de variabilité interne est certainement lié à un manque de variabilité dans la partie dynamique des modèles et non pas à des déficiences dans les paramétrisations chimiques.

Ensuite, nous avons porté notre attention sur la variabilité de la vapeur d'eau stratosphérique et, en particulier, sur les phénomènes de variations assez rapides (aussi appelées ruptures) de sa teneur qui peuvent générer un forçage climatique très significatif. L'une des ruptures les plus marquantes observée dans des mesures ballons et satellites a été la chute de la teneur en vapeur d'eau d'un demi ppmv environ dans la basse stratosphère en 20001. La capacité des CCM à reproduire ces ruptures est évaluée à partir des comparaisons des longues séries temporelles d'observations sondes effectuées à Boulder et satellitaires à partir des observations HALOE. On retrouve dans l'évaluation de la variabilité de la vapeur d'eau dans les CCM les mêmes caractéristiques générales que pour les autres espèces traitées

spécifiquement dans le chapitre 4. L'analyse des séries temporelles avec l'algorithme de détection de ruptures montre que les CCM sous-estiment d'environ un facteur 2 les amplitudes des grandes ruptures et ne reproduisent pas les brusques sauts tel que celui de 2001, de première importance dans les observations. Même si la rupture de vapeur d'eau stratosphérique observée en 2001 coïncide avec une variation rapide du forçage de l'ENSO, le signal n'apparaît pas dans la vapeur d'eau stratosphérique des CCM ou, du moins, dans la composante linéaire de la réponse de la vapeur d'eau au forçage ENSO calculée régression linéaire multiple. Nous avons aussi réalisé une analyse des ruptures dans les résiduels des régressions linéaires multiples (qui est assimilé ici à de la variabilité interne). Les résultats indiquent que les grandes ruptures du type de 2001 visibles dans les séries d'observations sont probablement aussi générées par de la variabilité interne qui, dans notre analyse, comprend aussi les réponses non linéaires aux forçages externes. Comme les CCM représentent mal la composante interne de la variabilité, il n'est pas surprenant qu'ils sous-estiment l'amplitude des ruptures.

Les résultats des chapitres 3 et 4 démontrent la faiblesse de la variabilité interne de la dynamique stratosphérique dans les CCM. On peut imaginer plusieurs origines de cette déficience. Premièrement, comme les CCM sont forcés à la surface par des SST analysées, il est possible que ce forçage à la surface limite la propre variabilité interne de la dynamique des CCM. Il serait ainsi intéressant de réaliser des simulations du même type avec des CCM couplés à des modèles d'océan et d'appliquer la même méthodologie pour analyser les différentes composantes de la variabilité inter-annuelle. Deuxièmement, une autre origine possible de cette déficience est l'altitude du sommet des CCM qui pourrait ne pas être assez haute pour pouvoir représenter toute la variabilité interne de la moyenne atmosphère. En effet, des études ont montré que les modèles avec un sommet bas (sous la stratopause) n'arrivaient pas à simuler la variabilité stratosphérique épisodique telle que les réchauffements stratosphériques soudains [Cagnazzo and Manzini, 2009; Shaw and Perlwitz, 2010] alors que ces modèles semblent simuler un climat stratosphérique moyen et des tendances historiques très similaires à celles des modèles qui ont un sommet haut [Hardiman et al., 2012; Shaw and Perlwitz, 2010]. Clairement, une partie de la variabilité interne de la stratosphère a pour origine des couplages avec les couches supérieures de l'atmosphère. Cependant, on ne sait toujours pas jusqu'à quelle altitude un modèle doit monter pour pouvoir résoudre toute cette variabilité stratosphérique.

Enfin, nous nous sommes intéressés au forçage climatique généré par les variations d'ozone stratosphérique prédites par les CCM pour la fin du siècle. L'ensemble des CCM sont en assez bon accord sur l'augmentation de l'ozone total au cours de ce siècle. Néanmoins, bien que l'ozone stratosphérique et son forçage radiatif apparaissent avoir évolué ensemble au cours du siècle dernier (diminution de l'ozone stratosphérique créant un forçage négatif), nous avons pu montrer qu'il n'est pas du tout certain que l'actuel forçage radiatif négatif va disparaître avec la reconstitution de l'ozone stratosphérique. Selon notre analyse basée sur des projections futures d'ozone stratosphériques issues du programme CCMVal, le forçage radiatif en 2100 par rapport à 2000 pourrait, soit être négligeable, soit dépasser $0,25 \text{ W.m}^{-2}$ et être ainsi comparable au forçage radiatif actuel induit par l'ozone troposphérique ($-0,35 \text{ W.m}^{-2}$). En d'autres mots, l'ozone stratosphérique pourrait continuer à compenser une partie du forçage radiatif positif dû à l'augmentation des gaz à effet de serre au cours de ces dernières décennies,

ou devenir un contributeur important au réchauffement climatique. Cette dispersion sur la valeur du forçage radiatif de l'ozone stratosphérique dans le futur devrait être encore réévaluée à la hausse si les projections futures de l'ozone prenaient en compte des incertitudes des émissions futures des gaz à effet de serre. La grande dispersion des CCM sur le futur forçage radiatif de l'ozone stratosphérique a pour origine la dispersion dans les projections d'ozone dans la très basse stratosphère, en particulier aux moyennes latitudes de l'hémisphère nord. Le bilan de l'ozone dans cette région est complexe et peut-être mal reproduit par les CCM. C'est en particulier le cas de plusieurs processus clés tels que la destruction d'ozone in situ, les échanges entre les tropiques et les régions polaires et les échanges stratosphère-troposphère. Puisque l'ozone de la très basse stratosphère ne représente pas une part très importante de la colonne totale d'ozone, la modélisation de cette région n'a pas fait l'objet d'une attention particulière dans les modèles de chimie-climat. Néanmoins, si à l'avenir on souhaite réduire les incertitudes dans le forçage radiatif futur induit par l'ozone stratosphérique, il sera nécessaire d'affiner la paramétrisation des processus de la très basse stratosphère associée au bilan de l'ozone dans les CCM et certainement d'augmenter la résolution des modèles dans cette région. Il convient de souligner que l'éventuel changement de signe du forçage radiatif induit par l'ozone stratosphérique, ou le découplage entre l'évolution de sa charge globale et son forçage radiatif sont des caractéristiques très inhabituelles parmi celles des constituants clés du forçage climatique.

Acronymes

CCM	modèle de chimie-climat
CCMVal	Chemistry-Climate Model Validation Activity
CTM	modèle de chimie transport
DU	Dobson Unit
DJF	Décembre Janvier Février
ECMWF	European Center for Medium-Range Weather Forecasts
EESC	Equivalent effective stratospheric chlorine
EP	Eliassen-Palm
ENSO	El Niño - Southern Oscillation
FDH	Fixed Dynamical Heating
FT-IR	spectromètre à transformée de Fourier
GCM	mmodèle de circulation générale
GES	Gaz à Effet de Serre
GHG	greenhouse gas
GISS	Goddard Institute for Space Studies
HALOE	Halogen Occultation Experiment
IPCC	Intergovernmental Panel on Climate Change
IPSL	Institut Pierre Simon Laplace
ISCCP	International Satellite Cloud Climatology Project
JJA	Juin Juillet Août
JOSIE	Jülich Ozone Intercomparison Experiment
JPL	Jet Propulsion Laboratory
LMS	Lower Most Stratosphere
LS	Lower Stratosphere
LW	longwave
MAM	Mars Avril Mai
MLR	regression linéaire multiple
MEI	index multidimensionnel
MMM	moyenne des modèles
MMM QBO_f	moyenne des modèles avec QBO forcée
MMM QBO_p	moyenne des modèles sans QBO
NASA	National Aeronautics and Space Administration

NAT	acide nitrique trihydraté
NDACC	Network for Detection of Atmospheric Composition Change
NDSC	Network for Detection of Stratospheric Change
NCAR	National Center for Atmospheric Research
NCEP	National Centers for Environmental Prediction
NH	North Hemisphere
NOAA	National Oceanic and Atmospheric Administration
ODS	Ozone Depleting Substances
PSC	Polar Stratospheric Cloud
QBO	oscillation quasi-biennale
RETRO	Reanalysis of the TROpospheric chemical composition
RCP	Representative Concentration Pathways
RF	Radiative Forcing
SAGE	Stratospheric Aerosol and Gas Experiment
SAM	Atratospheric Aerosol Measurement
SAOZ	Système d'Analyse par Observation Zénithale
SH	South hemisphere
SHADOZ	Southern Hemisphere ADditional OZonesondes
SME	Solar Mesosphere Explorer
SON	septembre octobre novembre
SPARC	Statospheric Processes And their role in Climate
SRES	scénarios
SST	Sea Surface Temperature
SW	shortwave
T2Mz	2D monthly mean fields (latitude-pressure)
T3M	3D monthly mean fields (latitude-longitude-pressure)
TOMS	Total Ozone Mapping Spectrometer
TUV	Tropospheric and Ultraviolet Visible
UARS	Upper Atmosphere Research Satellite
UNEP	United Nations Environment Programme
US	Upper Stratosphere
UTLS	Upper-Troposphere and Lower-Stratosphere
UV	Ultra-Violet
WMO	World Meteorological Organisation

Glossaire des espèces chimiques

Cl	chlore atomique
Cl _y	chlore inorganique
ClO	monoxyde de chlore
Cl ₂	dichlore
HCl	acide chlorhydrique
ClONO ₂	nitrate de chlore
ClO _x	Radicaux chlorés
CFC	chlorofluorocarbone
HCFC	hydrochlorofluorocarbone
HCF	hydrofluorocarbone
PCF	hydrocarbures perfluorés
CFC-12	chlorofluorocarbone 12 (CCl ₂ F ₂)
Br	brome atomique
BrO	monoxyde de brome
BrO _x	radicaux bromés
BrONO ₂	nitrate de brome
N	azote atomique
NO	monxyte d'azote
NO ₂	dioxyde d'azote
NO ₃	trioxyde d'aozte
N ₂ O	protoxyde d'azote
N ₂ O ₅	pentoxyde d'azote
NO _x	radicaux azotés (incluant habituellement NO et NO ₂)
NO _y	composés azotés (incluant habituellement NO, NO ₂ , NO ₃ , N ₂ O ₅ , ClONO ₂ , HNO ₄ et HNO ₃)

O	oxygène atomique
O ₂	dioxygène
O ₃	ozone
H	hydrogène
HO _x	hydrogène impair
OH	radical hydroxyle
HO ₂	radical hydroperoxyde
H ₂ O ₂	peroxyde d'hydrogène
HNO ₃	acide nitrique
H ₂ O	eau
CHO _x	radicaux carbonés
CO ₂	dioxyde de carbone
CH ₄	méthane
H ₂ SO ₄	acide sulfurique
SO _x	radicaux soufrés
SF ₆	hexafluorure de soufre

Références

- AchutaRao, K., and K. Sperber, Simulation of the el niño southern oscillation : Results from the coupled model intercomparison project, *Climate Dynamics*, 19(3), 191–209, 2002.
- Akiyoshi, H., et al., A ccm simulation of the breakup of the antarctic polar vortex in the years 1980–2004 under the ccmval scenarios, *Journal of Geophysical Research*, 114, D03,103, 2009.
- Angell, J., Relation of antarctic 100 mb temperature and total ozone to equatorial qbo, equatorial sst, and sunspot number, 1958-87, *Geophysical Research Letters*, 15(8), 915–918, 1988.
- Arora, V., et al., The effect of terrestrial photosynthesis down regulation on the twentieth-century carbon budget simulated with the ccma earth system model, *Journal of Climate*, 22(22), 6066–6088, 2009.
- Austin, J., and N. Butchart, Coupled chemistry–climate model simulations for the period 1980 to 2020 : Ozone depletion and the start of ozone recovery, *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 129(595), 3225–3249, 2003.
- Austin, J., and R. Wilson, Ensemble simulations of the decline and recovery of stratospheric ozone, *Journal of Geophysical Research*, 111, D16,314, 2006.
- Austin, J., J. Wilson, F. Li, and H. Vömel, Evolution of water vapor concentrations and stratospheric age of air in coupled chemistry-climate model simulations, *Journal of the Atmospheric Sciences*, 64(3), 905–921, 2007.
- Austin, J., et al., Coupled chemistry climate model simulations of the solar cycle in ozone and temperature, *Journal of Geophysical Research*, 113, D11,306, 2008.
- Austin, J., et al., Decline and recovery of total column ozone using a multimodel time series analysis, *Journal of Geophysical Research*, 115(null), D00M10, 2010a.
- Austin, J., et al., Chemistry-climate model simulations of spring antarctic ozone, *Journal of Geophysical Research*, 115, D00M11, 2010b.

Références

- Baldwin, M., et al., The quasi-biennial oscillation, *Reviews of Geophysics*, 39(2), 179–229, 2001.
- Bates, D., and M. Nicolet, The photochemistry of atmospheric water vapor, *Journal of Geophysical Research*, 55(3), 301–327, 1950.
- Bodeker, G., J. Scott, K. Kreher, and R. McKenzie, Global ozone trends in potential vorticity coordinates using toms and gome intercompared against the dobson network- 1978-1998, *Journal of Geophysical Research*, 106, 23,029–23,042, 2001.
- Bojkov, R., C. Zerefos, D. Balis, I. Ziomas, and A. Bais, Record low total ozone during northern winters of 1992 and 1993, *Geophysical Research Letters*, 20(13), 1351–1354, 1993.
- Bowman, K., Global patterns of the quasi-biennial oscillation in total ozone, *Journal of Atmospheric Sciences*, 46, 3328–3343, 1989.
- Brasseur, G., and S. Solomon, *Aeronomy of the middle atmosphere : Chemistry and physics of the stratosphere and mesosphere*, vol. 32, Kluwer Academic Pub, 2005.
- Brunner, D., J. Staehelin, J. Maeder, I. Wohltmann, G. Bodeker, et al., Variability and trends in total and vertically resolved stratospheric ozone based on the cato ozone data set, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 6(12), 4985–5008, 2006.
- Butchart, N., and A. Scaife, Removal of chlorofluorocarbons by increased mass exchange between the stratosphere and troposphere in a changing climate, *Nature*, 410(6830), 799–802, 2001.
- Butchart, N., et al., Simulations of anthropogenic change in the strength of the brewer–dobson circulation, *Climate Dynamics*, 27(7), 727–741, 2006.
- Butchart, N., et al., Chemistry-climate model simulations of twenty-first century stratospheric climate and circulation changes, *Journal of Climate*, 23(20), 5349–5374, 2010.
- Butchart, N., et al., Multimodel climate and variability of the stratosphere, *Journal of Geophysical Research*, 116(D5), D05,102, 2011.
- Cagnazzo, C., and E. Manzini, Impact of the stratosphere on the winter tropospheric teleconnections between enso and the north atlantic and european region, *Journal of climate*, 22(5), 1223–1238, 2009.
- CCMVal, S., Sparc ccmval report on the evaluation of chemistry-climate models, edited by : Eyring, v., shepherd, tg, and waugh, dw, 2010.
- Chandra, S., The solar uv related changes in total ozone from a solar rotation to a solar cycle, *Geophysical Research Letters*, 18(5), 837–840, 1991.
- Chandra, S., and R. McPeters, The solar cycle variation of ozone in the stratosphere inferred from nimbus 7 and noaa 11 satellites, *Journal of Geophysical Research*, 99, 20, 1994.

- Chiou, E., L. Thomason, and W. Chu, Variability of stratospheric water vapor inferred from sage ii, haloe, and boulder (colorado) balloon measurements, *Journal of Climate*, 19(16), 4121–4133, 2006.
- Cionni, I., et al., Ozone database in support of cmip 5 simulations : results and corresponding radiative forcing, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 11(21), 11,267–11,292, 2011.
- Coffey, M., Observations of the impact of volcanic activity on stratospheric chemistry, *Journal of Geophysical Research*, 101(D3), 6767–6780, 1996.
- Cook, P., and H. Roscoe, Variability and trends in stratospheric no₂ in antarctic summer, and implications for stratospheric noy, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 9, 3601–3612, 2009.
- Crutzen, P., The influence of nitrogen oxides on the atmospheric ozone content, *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 96(408), 320–325, 1970.
- Dameris, M., et al., Long-term changes and variability in a transient simulation with a chemistry-climate model employing realistic forcing, *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions*, 5(2), 2297–2353, 2005.
- Danilin, M., et al., Aviation fuel tracer simulation : Model intercomparison and implications, *Geophysical Research Letters*, 25(21), 3947–3950, 1998.
- Deckert, R., and M. Dameris, Higher tropical ssts strengthen the tropical upwelling via deep convection, *Geophysical Research Letters*, 35, L10,813, 2008.
- Delmas, R., G. Mégie, and V. Peuch, *Physique et chimie de l'atmosphère*, Belin, 2005.
- Dhomse, S., M. Weber, I. Wohltmann, M. Rex, J. Burrows, et al., On the possible causes of recent increases in northern hemispheric total ozone from a statistical analysis of satellite data from 1979 to 2003, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 6(5), 1165–1180, 2006.
- Dhomse, S., M. Weber, J. Burrows, et al., The relationship between tropospheric wave forcing and tropical lower stratospheric water vapor, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 8(3), 471–480, 2008.
- Dils, B., et al., Comparisons between sciamachy and ground-based ftir data for total columns of co, ch₄, co₂ and n₂o, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 6(7), 1953–1976, 2006.
- Dirksen, R., K. Boersma, H. Eskes, D. Ionov, E. Bucsela, P. Levelt, and H. Kelder, Evaluation of stratospheric no₂ retrieved from the ozone monitoring instrument : Intercomparison, diurnal cycle, and trending, *Journal of Geophysical Research*, 116(D8), D08,305, 2011.
- Dufresne, J., J. Quaas, O. Boucher, S. Denvil, and L. Fairhead, Contrasts in the effects on climate of anthropogenic sulfate aerosols between the 20th and the 21st century, *Geophysical Research Letters*, 32(21), L21,703, 2005.

Références

- Dvortsov, V., and S. Solomon, Response of the stratospheric temperatures and ozone to past and future increases in stratospheric humidity, *Journal of Geophysical Research*, 106(D7), 7505–7514, 2001.
- Efron, B., and R. Tibshirani, *An introduction to the bootstrap*, vol. 57, Chapman & Hall/CRC, 1993.
- Evans, S., R. Toumi, J. Harries, M. Chipperfield, and J. Russell III, Trends in stratospheric humidity and the sensitivity of ozone to these trends, *Journal of Geophysical Research*, 103, 8715–8725, 1998.
- Eyring, V., et al., Assessment of temperature, trace species, and ozone in chemistry-climate model simulations of the recent past, *Journal of Geophysical Research*, 111(10.1029), 2006.
- Eyring, V., et al., Multimodel projections of stratospheric ozone in the 21st century, *Journal of Geophysical Research*, 112(D16303), 2007.
- Eyring, V., et al., Overview of the new ccmval reference and sensitivity simulations in support of upcoming ozone and climate assessments and the planned sparcc ccmval report, *SPARC Newsl*, 30, 20–26, 2008.
- Eyring, V., et al., Multi-model assessment of stratospheric ozone return dates and ozone recovery in ccmval-2 models, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 10(19), 9451–9472, 2010.
- Fahey, D., and M. Hegglin, Twenty questions and answers about the ozone layer : 2010 update, 2011.
- Farman, J., B. Garnier, and J. Shanklin, Large losses of total ozone in antarctica reveal seasonal clo (x)/no (x) interaction, *Nature*, 315, 207–210, 1985.
- Fioletov, V., G. Bodeker, A. Miller, R. McPeters, and R. Stolarski, Global and zonal total ozone variations estimated from ground-based and satellite measurements : 1964–2000, *Journal of Geophysical Research*, 107(D22), 4647, 2002.
- Fischer, A., et al., Interannual-to-decadal variability of the stratosphere during the 20th century : ensemble simulations with a chemistry-climate model, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 8(7755-7777), 2008.
- Fish, D., H. Roscoe, and P. Johnston, Possible causes of stratospheric no2 trends observed at lauder, *Geophysical Research Letters*, 20, 3313–3316, 2000.
- Fleming, E., S. Chandra, C. Jackman, D. Considine, and A. Douglass, The middle atmospheric response to short and long term solar uv variations : analysis of observations and 2d model results, *Journal of Atmospheric and Terrestrial Physics*, 57(4), 333–365, 1995.
- Folkins, I., C. Braun, A. Thompson, and J. Witte, Tropical ozone as an indicator of deep convection, *Journal of Geophysical Research*, 107(10.1029), 2002.

- Forster, P., and K. Shine, Assessing the climate impact of trends in stratospheric water vapor, *Geophysical Research Letters*, 29(6), 1086, 2002.
- Forster, P., et al., Evaluation of radiation scheme performance within chemistry climate models, *Journal of Geophysical Research*, 116(D10), D10,302, 2011.
- Fueglistaler, S., Stepwise changes in stratospheric water vapor?, *Journal of Geophysical Research*, 117(D13), D13,302, 2012.
- Fueglistaler, S., and P. Haynes, Control of interannual and longer-term variability of stratospheric water vapor, *Journal of Geophysical Research*, 110(24), 108, 2005.
- Garcia, R., D. Marsh, D. Kinnison, B. Boville, and F. Sassi, Simulation of secular trends in the middle atmosphere, 1950–2003, *Journal of Geophysical Research*, 112(10.1029), 2007.
- Gerber, E., et al., Stratosphere-troposphere coupling and annular mode variability in chemistry-climate models, *Journal of Geophysical Research*, 115, D00M06, 2010.
- Gettelman, A., et al., The tropical tropopause layer 1960–2100, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 9(5), 1621–1637, 2009.
- Gettelman, A., et al., Multimodel assessment of the upper troposphere and lower stratosphere : Tropics and global trends, *Journal of Geophysical Research*, 115, D00M08, 2010.
- Gray, L., et al., Solar influences on climate, *Reviews of Geophysics*, 48(4), RG4001, 2010.
- Griesfeller, A., J. Griesfeller, F. Hase, I. Kramer, P. Loes, S. Mikuteit, U. Raffalski, T. Blumenstock, and H. Nakajima, Comparison of ilas-ii and ground-based ftir measurements of o₃, hno₃, n₂o, and ch₄ over kiruna, sweden, *Journal of Geophysical Research*, 111(D11), D11S07, 2006.
- Griffith, D., N. Jones, B. McNamara, C. Walsh, W. Bell, and C. Bernardo, Intercomparison of ndsc ground-based solar ftir measurements of atmospheric gases at lauder, new zealand, *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology*, 20(8), 1138–1153, 2003.
- Gruzdev, A., Latitudinal dependence of variations in stratospheric no₂ content, *Izvestiya Atmospheric and Oceanic Physics*, 44(3), 319–333, 2008.
- Haigh, J., The role of stratospheric ozone in modulating the solar radiative forcing of climate, *Nature*, 370(6490), 544–546, 1994.
- Hall, T., and M. Prather, Simulations of the trend and annual cycle in stratospheric co₂, *Journal of Geophysical Research*, 98(D6), 10,573–10, 1993.
- Hardiman, S., N. Butchart, T. Hinton, S. Osprey, and L. Gray, The effect of a well resolved stratosphere on surface climate : Differences between cmip5 simulations with high and low top versions of the met office climate model, *Journal of Climate*, (2012), 2012.

Références

- Harris, N., R. Hudson, and C. Phillips, Sparc/ioc/gaw assessment of trends in the vertical distribution of ozone, sparc rep. 1, world meteorol, *World Meteorological Organisation, Geneva*, 1998.
- Harris, N., et al., Ozone trends at northern mid-and high latitudes—a european perspective, *Annales Geophysicae*, 26, 1207–1220, 2008.
- Harrison, D., and N. Larkin, El nino-southern oscillation sea surface temperature and wind anomalies, 1946–1993, *Reviews of Geophysics*, 36(3), 353–399, 1998.
- Hassler, B., P. Young, R. Portmann, G. Bodeker, J. Daniel, K. Rosenlof, and S. Solomon, Comparison of three vertically resolved ozone data bases : climatology, trends and radiative forcings, *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions*, 12, 26,561–26,605, 2012.
- Hegglin, M., et al., Multimodel assessment of the upper troposphere and lower stratosphere : Extratropics, *Journal of Geophysical Research*, 115(null), D00M09, 2010.
- Hendrick, F., et al., Ndacc/saoz uv-visible total ozone measurements : improved retrieval and comparison with correlative ground-based and satellite observations, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 11, 5975–5995, 2011.
- Hofmann, D., et al., Ozone loss in the lower stratosphere over the united states in 1992–1993 : Evidence for heterogeneous chemistry on the pinatubo aerosol, *Geophysical Research Letters*, 21(1), 65–68, 1994.
- Hofmann, D., et al., Intercomparison of uv/visible spectrometers for measurements of stratospheric no2 for the network for the detection of stratospheric change, *Journal of Geophysical Research*, 100(D8), 16,765–16, 1995.
- Hollandsworth, S., R. McPeters, L. Flynn, W. Planet, A. Miller, and S. Chandra, Ozone trends deduced from combined nimbus 7 sbuv and noaa 11 sbuv/2 data, *Geophysical Research Letters*, 22(8), 905–908, 1995.
- Holton, J., *An introduction to dynamic meteorology*, vol. 1, Academic press, 2004.
- Hood, L., The solar cycle variation of total ozone : Dynamical forcing in the lower stratosphere, *Journal of Geophysical Research*, 102(D1), 1355–1370, 1997.
- Hood, L., and J. McCormack, Components of interannual ozone change based on nimbus 7 toms data, *Geophysical Research Letters*, 19(23), 2309–2312, 1992.
- Hurst, D., S. Oltmans, H. Vömel, K. Rosenlof, S. Davis, E. Ray, E. Hall, and A. Jordan, Stratospheric water vapor trends over boulder, colorado : Analysis of the 30 year boulder record, *Journal of Geophysical Research*, 116(D2), D02,306, 2011.

- IPCC, J., McCarthy, O. Canziani, N. Leary, and D. Dokken, Climate change 2001 : impacts, adaptation, and vulnerability : contribution of working group ii to the third assessment report of the intergovernmental panel on climate change, 2001.
- IPCC, M., Parry, O. Canziani, J. Palutikof, P. Van der Linden, and C. Hanson, Ipcc, 2007 : climate change 2007 : impacts, adaptation and vulnerability. contribution of working group ii to the fourth assessment report of the intergovernmental panel on climate change, 2007.
- Jin, J., et al., Severe arctic ozone loss in the winter 2004/2005 : Observations from ace-fts, *Geophysical Research Letters*, 33(15), L15,801, 2006.
- Johns, T., et al., The new hadley centre climate model (hadgem1) : Evaluation of coupled simulations, *Journal of Climate*, 19(7), 1327–1353, 2006.
- Joshi, M., and K. Shine, A gcm study of volcanic eruptions as a cause of increased stratospheric water vapor, *Journal of Climate*, 16(21), 3525–3534, 2003.
- Jourdain, L., S. Bekki, F. Lott, and F. Lefevre, The coupled chemistry-climate model lmdz-reprobus : description and evaluation of a transient simulation of the period, *Annales Geophysicae*, 26, 1391–1413, 2008.
- Karpechko, A., N. Gillett, B. Hassler, K. Rosenlof, and E. Rozanov, Quantitative assessment of southern hemisphere ozone in chemistry-climate model simulations, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 10(3), 1385–1400, 2010.
- Kley, D., J. Russell, C. Phillips, W. C. R. Programme, W. M. Organization, I. O. Commission, I. C. of Scientific Unions, S. W. V. W. Group, and S. S. S. Group, *SPARC assessment of upper tropospheric and stratospheric water vapour*, SPARC office, 2000.
- Kohlhepp, R., S. Barthlott, T. Blumenstock, F. Hase, I. Kaiser, U. Raffalski, and R. Ruhnke, Trends of hcl, clono2, and hf column abundances from ground-based ftir measurements in kiruna (sweden) in comparison with kasima model calculations, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 11, 4669–4677, 2011.
- Kuang, Z., and C. Bretherton, Convective influence on the heat balance of the tropical tropopause layer : A cloud-resolving model study, *Journal of the Atmospheric Sciences*, 61(23), 2919–2927, 2004.
- Lamarque, J., D. Kinnison, P. Hess, and F. Vitt, Simulated lower stratospheric trends between 1970 and 2005 : Identifying the role of climate and composition changes, *Journal of Geophysical Research*, 113, D12,301, 2008.
- Lambert, J., et al., Ground-based comparisons of early sciamachy o3 and no2 columns, in *ESA Special Publication*, vol. 531, p. 37, 2003.

Références

- Lean, J., G. Rottman, J. Harder, and G. Kopp, Sorce contributions to new understanding of global change and solar variability, *Solar Physics*, 230, 27–53, 2005.
- Liley, J., P. Johnston, R. McKenzie, A. Thomas, and I. Boyd, Stratospheric no₂ variations from a long time series at lauder, new zealand, *Journal of Geophysical Research*, 105(D9), 11,633–11, 2000.
- Lomb, N., Least-squares frequency analysis of unequally spaced data, *Astrophysics and Space Science*, 39(2), 447–462, 1976.
- Mäder, J., J. Staehelin, D. Brunner, W. Stahel, I. Wohltmann, and T. Peter, Statistical modeling of total ozone : Selection of appropriate explanatory variables, *Journal of Geophysical Research*, 112(D11), D11,108, 2007.
- Manney, G., et al., Chemical depletion of ozone in the arctic lower stratosphere during winter 1992-93, *Nature*, 370(6489), 429–434, 1994.
- Manney, G., et al., Unprecedented arctic ozone loss in 2011, *Nature*, 478(7370), 469–475, 2011.
- Marchand, M., et al., Dynamical amplification of the stratospheric solar response simulated with the chemistry-climate model lmdz-reprobus, *Journal of Atmospheric and Solar-Terrestrial Physics*, 2011.
- McCormack, J., L. Hood, R. Nagatani, A. Miller, W. Planet, and R. McPeters, Approximate separation of volcanic and 11-year signals in the sbuv-sbuv/2 total ozone record over the 1979-1995 period, *Geophysical Research Letters*, 24(22), 2729–2732, 1997.
- Molina, M., and F. Rowland, Stratospheric sink for chlorofluoromethanes : chlorine atomc-atylsed destruction of ozone, *Nature*, 249(5460), 810–812, 1974.
- Morgenstern, O., et al., Review of the formulation of present-generation stratospheric chemistry-climate models and associated external forcings, *Journal of Geophysical Research*, 115(null), D00M02, 2010.
- Mote, P., et al., An atmospheric tape recorder : The imprint of tropical tropopause temperatures on stratospheric water vapor, *Journal of Geophysical Research*, 101, 3989–4006, 1996.
- Nedoluha, G., R. Bevilacqua, R. Gomez, D. Siskind, B. Hicks, J. Russell III, and B. Connor, Increases in middle atmospheric water vapor as observed by the halogen occultation experiment and the ground-based water vapor millimeter-wave spectrometer from 1991 to 1997, *Journal of Geophysical Research*, 103(D3), 3531–3543, 1998.
- Newman, P., J. Daniel, D. Waugh, E. Nash, et al., A new formulation of equivalent effective stratospheric chlorine (eesc), *Atmospheric Chemistry and Physics*, 7(17), 4537–4552, 2007.
- Noxon, J., Stratospheric no₂ 2. global behavior, *Journal of Geophysical Research*, 84(C8), 5067–5076, 1979.

- Oinas, V., A. Lacis, D. Rind, D. Shindell, and J. Hansen, Radiative cooling by stratospheric water vapor : Big differences in gcm results, *Geophysical Research Letters*, 28(14), 2791–2794, 2001.
- Oltmans, S., Measurements of water vapor in the stratosphere with a frost point hygrometer, in *Proc. 1985 Int. Symp. on Moisture and Humidity*, pp. 251–258, 1985.
- Oltmans, S., and D. Hofmann, Increase in lower-stratospheric water vapour at a mid-latitude northern hemisphere site from 1981 to 1994, *Nature*, 374(6518), 146–149, 1995.
- Oltmans, S., H. Vomel, D. Hofmann, K. Rosenlof, and D. Kley, Increase in stratospheric water vapor from balloonborne, frostpoint hygrometer measurements at washington, d. c., and boulder, colorado, *Geophysical Research Letters*, 27(21), 3453–3456, 2000.
- Oman, L., D. Waugh, S. Kawa, R. Stolarski, A. Douglass, and P. Newman, Mechanisms and feedback causing changes in upper stratospheric ozone in the 21st century, *Journal of Geophysical Research*, 115, D05,303, 2010a.
- Oman, L., et al., Multimodel assessment of the factors driving stratospheric ozone evolution over the 21st century, *Journal of Geophysical Research*, 115, D24,306, 2010b.
- Pawson, S., R. Stolarski, A. Douglass, P. Newman, J. Nielsen, S. Frith, and M. Gupta, Goddard earth observing system chemistry-climate model simulations of stratospheric ozone-temperature coupling between 1950 and 2005, *Journal of Geophysical Research*, 113(D12), D12,103, 2008.
- Pitari, G., E. Mancini, V. Rizi, and D. Shindell, Impact of future climate and emission changes on stratospheric aerosols and ozone, *Journal of the Atmospheric Sciences*, 59(3), 414–440, 2002.
- Pommereau, J., and F. Goutail, O₃ and no₂ ground-based measurements by visible spectrometry during arctic winter and spring 1988, *Geophysical Research Letters*, 15(8), 891–894, 1988.
- Portmann, R., and S. Solomon, Indirect radiative forcing of the ozone layer during the 21st century, *Geophysical research letters*, 34(2), L02,813, 2007.
- Prather, M., X. Zhu, Q. Tang, J. Hsu, and J. Neu, An atmospheric chemist in search of the tropopause, *Journal of Geophysical Research*, 116(D4), D04,306, 2011.
- Randel, W., and J. Cobb, Coherent variations of monthly mean total ozone and lower stratospheric temperature, *Journal of Geophysical Research*, 99, 5433–5433, 1994.
- Randel, W., and A. Thompson, Interannual variability and trends in tropical ozone derived from sage ii satellite data and shadoz ozonesondes, *Journal of Geophysical Research*, 116, D07,303, 2011.
- Randel, W., and F. Wu, A stratospheric ozone profile data set for 1979–2005 : Variability, trends, and comparisons with column ozone data, *Journal of Geophysical Research*, 112, D06,313, 2007.

Références

- Randel, W., F. Wu, J. Russell III, J. Waters, and L. Froidevaux, Ozone and temperature changes in the stratosphere following the eruption of mount pinatubo, *Journal of Geophysical Research*, 100(D8), 16,753–16, 1995.
- Randel, W., F. Wu, R. Swinbank, J. Nash, and A. O'Neill, Global qbo circulation derived from ukmo stratospheric analyses, *Journal of the Atmospheric Sciences*, 56(4), 457–474, 1999.
- Randel, W., F. Wu, H. Voemel, G. Nedoluha, and P. Forster, Decreases in stratospheric water vapor after 2001 : Links to changes in the tropical tropopause and the brewer-dobson circulation, *Journal of Geophysical Research*, 111(12), 312, 2006.
- Randel, W., et al., The sparcs intercomparison of middle-atmosphere climatologies, *Journal of climate*, 17(5), 986–1003, 2004.
- Rap, A., P. Forster, A. Jones, O. Boucher, J. Haywood, N. Bellouin, and R. De Leon, Parameterization of contrails in the uk met office climate model, *Journal of Geophysical Research*, 115(D10), D10,205, 2010.
- Rayner, N., P. Brohan, D. Parker, C. Folland, J. Kennedy, M. Vanicek, T. Ansell, and S. Tett, Improved analyses of changes and uncertainties in sea surface temperature measured in situ since the mid-nineteenth century : The hadsst2 dataset, *Journal of Climate*, 19(3), 446–469, 2006.
- Reinsel, G., E. Weatherhead, G. Tiao, A. Miller, R. Nagatani, D. Wuebbles, and L. Flynn, On detection of turnaround and recovery in trend for ozone, *Journal of Geophysical Research*, 107(10.1029), 2002.
- Riese, M., F. Ploeger, A. Rap, B. Vogel, P. Konopka, M. Dameris, and P. Forster, Impact of uncertainties in atmospheric mixing on simulated utls composition and related radiative effects, *Journal of Geophysical Research*, 117(D16), D16,305, 2012.
- Robock, A., Volcanic eruptions and climate, *Reviews of Geophysics*, 38(2), 191–220, 2000.
- Rohs, S., C. Schiller, M. Riese, A. Engel, U. Schmidt, T. Wetter, I. Levin, T. Nakazawa, and S. Aoki, Long-term changes of methane and hydrogen in the stratosphere in the period 1978–2003 and their impact on the abundance of stratospheric water vapor, *Journal of Geophysical Research*, 111(14), 315, 2006.
- Roscoe, H., et al., Slant column measurements of o3 and no2 during the ndsc intercomparison of zenith-sky uv-visible spectrometers in june 1996, *Journal of atmospheric chemistry*, 32(2), 281–314, 1999.
- Rosenfield, J., and M. Schoeberl, Recovery of the tropical lower stratospheric ozone layer, *Geophysical Research Letters*, 32(21), L21,806, 2005.
- Rosenlof, K., and G. Reid, Trends in the temperature and water vapor content of the tropical lower stratosphere : Sea surface connection, *Journal of Geophysical Research*, 113, D06,107, 2008.

- Rosenlof, K., et al., Stratospheric water vapor increases over the past half-century, *Geophysical Research Letters*, 28(7), 1195–1198, 2001.
- Russell III, J., et al., The halogen occultation experiment, *Journal of Geophysical Research*, 98(D6), 10,777–10, 1993.
- Santee, M., G. Manney, L. Froidevaux, W. Read, and J. Waters, Six years of uars microwave limb sounder hno3 observations : Seasonal, interhemispheric, and interannual variations in the lower stratosphere, *Journal of Geophysical Research*, 104(D7), 8225–8246, 1999.
- Santee, M., G. Manney, N. Livesey, and W. Read, Three-dimensional structure and evolution of stratospheric hno3 based on uars microwave limb sounder measurements, *Journal of Geophysical Research*, 109(D15), D15,306, 2004.
- Sato, M., J. Hansen, M. McCormick, and J. Pollack, Stratospheric aerosol optical depths, 1850–1990, *Journal of Geophysical Research*, 98(D12), 22,987–22, 1993.
- Scaife, A., N. Butchart, D. Jackson, and R. Swinbank, Can changes in enso activity help to explain increasing stratospheric water vapor ?, *Geophysical Research Letters*, 30(17), 1880, 2003.
- Scargle, J., Studies in astronomical time series analysis. ii-statistical aspects of spectral analysis of unevenly spaced data, *The Astrophysical Journal*, 263, 835–853, 1982.
- Scherer, M., H. Vömel, S. Fueglistaler, S. Oltmans, J. Staehelin, et al., Trends and variability of midlatitude stratospheric water vapour deduced from the re-evaluated boulder balloon series and haloe, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 8(5), 1391–1402, 2008.
- Schraner, M., et al., Technical note : Chemistry-climate model socol : version 2.0 with improved transport and chemistry/microphysics schemes, *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions*, 8(3), 11,103–11,147, 2008.
- Schultz, M., Reanalysis of the tropospheric chemical composition over the past 40 years, a long-term global modelling study of tropospheric chemistry, emission data sets and methodologies for estimating emissions, work package 1, deliverable d1-6, eu-contract no, *Tech. rep.*, EVH2-CT-2002-00170, available at : <http://www.retro.enes.org/reports/D1>, 2007.
- Scinocca, J., N. McFarlane, M. Lazare, J. Li, and D. Plummer, Technical note : The cccma third generation agcm and its extension into the middle atmosphere, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 8(23), 7055–7074, 2008.
- Scinocca, J., D. Stephenson, T. Bailey, and J. Austin, Estimates of past and future ozone trends from multimodel simulations using a flexible smoothing spline methodology, *Journal of Geophysical Research*, 115(null), D00M12, 2010.

Références

- Seidel, D., R. Ross, J. Angell, and G. Reid, Climatological characteristics of the tropical tropopause as revealed by radiosondes, *Journal of Geophysical Research*, 106(D8), 7857–7878, 2001.
- Shaw, T. A., and J. Perlwitz, The impact of stratospheric model configuration on planetary-scale waves in northern hemisphere winter, *Journal of Climate*, 23(12), 3369–3389, 2010.
- Shibata, K., and M. Deushi, Simulation of the stratospheric circulation and ozone during the recent past (1980–2004) with the mri chemistry-climate model, *CGER's Supercomputer Monograph Report Vol. 13*, 2008a.
- Shibata, K., and M. Deushi, Long-term variations and trends in the simulation of the middle atmosphere 1980-2004 by the chemistry-climate model of the meteorological research institute, in *Annales Geophysicae*, vol. 26, pp. 1299–1326, European Geophysical Society, Max-Planck-Str. 13 37191 Katlenburg-Lindau Germany,, 2008b.
- Shiotani, M., Annual, quasi-biennial, and el nino-southern oscillation (enso) time-scale variations in equatorial total ozone, *Journal of Geophysical Research*, 97(D7), 7625–7633, 1992.
- Simmons, A., A. Untch, C. Jakob, P. Kållberg, and P. Uden, Stratospheric water vapour and tropical tropopause temperatures in ecmwf analyses and multi-year simulations, *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 125(553), 353–386, 1999.
- Solomon, S., Stratospheric ozone depletion : A review of concepts and history, *Reviews of Geophysics*, 37, 275–316, 1999.
- Solomon, S., R. Portmann, R. Garcia, L. Thomason, L. Poole, and M. McCormick, The role of aerosol variations in anthropogenic ozone depletion at northern midlatitudes, *Journal of Geophysical research*, 101(D3), 6713–6727, 1996.
- Solomon, S., D. Thompson, R. Portmann, S. Oltmans, and A. Thompson, On the distribution and variability of ozone in the tropical upper troposphere : Implications for tropical deep convection and chemical-dynamical coupling, *Geophysical Research Letters*, 32, L23,813, 2005.
- Solomon, S., K. Rosenlof, R. Portmann, J. Daniel, S. Davis, T. Sanford, and G. Plattner, Contributions of stratospheric water vapor to decadal changes in the rate of global warming, *Science*, 327(5970), 1219–1223, 2010.
- Son, S., et al., The impact of stratospheric ozone recovery on the southern hemisphere westerly jet, *Science*, 320(5882), 1486–1489, 2008.
- SPARC, Sparc/ioc/gaw assessment of trends in the vertical distribution of ozone, sparc report no. 1, ozone research and monitoring project report no. 43, 1998.
- Staehelin, J., N. Harris, C. Appenzeller, and J. Eberhard, Ozone trends : A review, *Reviews of Geophysics*, 39(2), 231–290, 2001.

- Steinbrecht, W., et al., Interannual variation patterns of total ozone and lower stratospheric temperature in observations and model simulations, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 6(2), 349–374, 2006.
- Stenke, A., V. Grewe, et al., Simulation of stratospheric water vapor trends : impact on stratospheric ozone chemistry, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 5(5), 1257–1272, 2005.
- Stolarski, R., and R. Cicerone, Stratospheric chlorine : a possible sink for ozone, *Canadian Journal of Chemistry*, 52(8), 1610–1615, 1974.
- Stolarski, R., P. Bloomfield, R. McPeters, and J. Herman, Total ozone trends deduced from nimbus 7 toms data, *Geophysical Research Letters*, 18(6), 1015–1018, 1991.
- Struthers, H., K. Kreher, J. Austin, R. Schofield, G. Bodeker, P. Johnston, H. Shiona, A. Thomas, et al., Past and future simulations of no₂ from a coupled chemistry-climate model in comparison with observations, *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions*, 4(4), 4545–4579, 2004.
- Struthers, H., et al., The simulation of the antarctic ozone hole by chemistry-climate models, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 9, 6363–6376, 2009.
- Svendby, T., and A. Dahlback, Statistical analysis of total ozone measurements in oslo, norway, 1978–1998, *Journal of Geophysical Research*, 109(D16), D16,107, 2004.
- Szopa, S., et al., Aerosol and ozone changes as forcing for climate evolution between 1850 and 2100, *Climate Dynamics*, pp. 1–28, 2012.
- Tabazadeh, A., M. Santee, M. Danilin, H. Pumphrey, P. Newman, P. Hamill, and J. Mergenthaler, Quantifying denitrification and its effect on ozone recovery, *Science*, 288(5470), 1407, 2000.
- Taylor, K., D. Williamson, F. Zwiers, L. L. N. L. P. for Climate Model Diagnosis, and Intercomparison, *The sea surface temperature and sea-ice concentration boundary conditions for AMIP II simulations*, Program for Climate Model Diagnosis and Intercomparison, Lawrence Livermore National Laboratory, University of California, 2000.
- Thomason, L., and T. Peter, Sparc assessment of stratospheric aerosol properties, wcrp-124, wmo/td-no. 1295, *Tech. rep.*, SPARC Report, 2006.
- Thomason, L., L. Poole, and T. Deshler, A global climatology of stratospheric aerosol surface area density deduced from stratospheric aerosol and gas experiment ii measurements : 1984–1994, *Journal of Geophysical Research*, 102(D7), 8967–8976, 1997.
- Thomason, L., S. Burton, B. Luo, T. Peter, et al., Sage ii measurements of stratospheric aerosol properties at non-volcanic levels, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 8(4), 983–995, 2008.

Références

- Tian, W., and M. Chipperfield, A new coupled chemistry–climate model for the stratosphere : The importance of coupling for future o3-climate predictions, *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 131(605), 281–303, 2005.
- Tiao, G., G. Reinsel, D. Xu, J. Pedrick, X. Zhu, A. Miller, J. DeLuisi, C. Mateer, and D. Wuebbles, Effects of autocorrelation and temporal sampling schemes on estimates of trend and spatial correlation, *Journal of Geophysical Research*, 95(D12), 20,507–20, 1990.
- Tourpali, K., et al., Clear sky uv simulations for the 21st century based on ozone and temperature projections from chemistry-climate models, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 9, 1165–1172, 2009.
- Trepte, C., and M. Hitchman, Tropical stratospheric circulation deduced from satellite aerosol data, *Nature*, 355(6361), 626–628, 1992.
- Tselioudis, G., E. Tromeur, W. Rossow, and C. Zerefos, Decadal changes in tropical convection suggest effects on stratospheric water vapor, *Geophysical Research Letters*, 37(14), L14,806, 2010.
- Vernier, J., et al., Major influence of tropical volcanic eruptions on the stratospheric aerosol layer during the last decade, *Geophysical Research Letters*, 38(12), L12,807, 2011.
- Vigouroux, C., et al., Evaluation of tropospheric and stratospheric ozone trends over western europe from ground-based ftir network observations, *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions*, 8(2), 5007–5060, 2008.
- Vömel, H., S. Oltmans, D. Hofmann, T. Deshler, and J. Rosen, The evolution of the dehydration in the antarctic stratospheric vortex, *Journal of Geophysical Research*, 100, 13–13, 1995.
- Witte, J., M. Schoeberl, A. Douglass, A. Thompson, et al., The quasi-biennial oscillation and annual variations in tropical ozone from shadoz and haloe, *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions*, 8(2), 6355–6378, 2008.
- WMO, Scientific assessment of ozone depletion : 1998, global ozone research and monitoring project—report no. 44, 1999.
- WMO, Scientific assessment of ozone depletion : 2002, global ozone research and monitoring project—report no. 47,, 2003.
- WMO, Scientific assessment of ozone depletion : 2006, global ozone research and monitoring project—report no. 50, 2007.
- WMO, Scientific assessment of ozone depletion : 2010, global ozone research and monitoring project—report no. 52, 2011.
- Wohltmann, I., R. Lehmann, M. Rex, D. Brunner, and J. Mäder, A process-oriented regression model for column ozone, *Journal of Geophysical Research*, 112(D12), D12,304, 2007.

- Yang, H., and K. Tung, Statistical significance and pattern of extratropical qbo in, *Geophysical Research Letters*, 21(20), 2235–2238, 1994.
- Zander, R., E. Mahieu, P. Demoulin, P. Duchatelet, G. Roland, C. Servais, M. Mazière, S. Reimann, and C. Rinsland, Our changing atmosphere : Evidence based on long-term infrared solar observations at the jungfrauoch since 1950, *Science of the Total Environment*, 391(2-3), 184–195, 2008.
- Zawodny, J., and M. McCormick, Stratospheric aerosol and gas experiment ii measurements of the quasi-biennial oscillations in ozone and nitrogen dioxide, *Journal of Geophysical Research*, 96(D5), 9371–9377, 1991.
- Zerefos, C., K. Tourpali, B. Bojkov, D. Balis, B. Rognerund, and I. Isaksen, Solar activity-total column ozone relationships : Observations and model studies with heterogeneous chemistry, *Journal of Geophysical Research*, 102, 1561–1569, 1997.
- Zhou, X., M. Geller, and M. Zhang, Cooling trend of the tropical cold point tropopause temperatures and its implications, *Journal of Geophysical Research*, 106, 1511–1522, 2001.
- Ziemke, J., S. Chandra, R. McPeters, and P. Newman, Dynamical proxies of column ozone with applications to global trend models, *Journal of Geophysical Research*, 102, 6117–6130, 1997.
